

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS

Instituto de Física “Gleb Wataghin”

A Técnica de Suscetibilidade AC aplicada ao Estudo de Supercondutores do Tipo – II

Claudio Antonio Cardoso

Orientador: Prof. Dr. Oscar Ferreira de Lima

Tese apresentada ao Instituto de Física “Gleb Wataghin” como pré- requisito parcial para a obtenção do título de Doutor em Ciências.
--

Campinas – SP
17 de Julho de 2001

*Projeto financiado pela Fundação de Amparo à Pesquisa do
Estado de São Paulo (FAPESP)*

**FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DO IFGW - UNICAMP**

C179t	<p>Cardoso, Claudio Antonio A técnica de suscetibilidade AC aplicada ao estudo de supercondutores do tipo II / Claudio Antonio Cardoso. -- Campinas, SP : [s.n.], 2001.</p> <p>Orientador: Oscar Ferreira de Lima. Tese (doutorado) - Universidade Estadual de Campinas, Instituto de Física “Gleb Wataghin”.</p> <p>1. Supercondutores do tipo II. 2. Supercondutividade - Propriedades magnéticas. 3. Susceptibilidade magnética. I. Lima, Oscar Ferreira de. II. Universidade Estadual de Campinas. Instituto de Física “Gleb Wataghin”. III. Título.</p>
--------------	---

Agradecimentos

Em um trabalho tão longo e complexo quanto um projeto de doutoramento, muito do seu sucesso deve-se a um enorme número de pessoas que, de uma forma ou de outra, acabam sendo envolvidas no trabalho. Não seria justo da minha parte iniciar a apresentação do trabalho em si sem dar o devido crédito a estas pessoas e expressar minha gratidão pela inestimável ajuda que obtive nestes últimos quatro anos.

Em primeiro lugar, meus mais sinceros agradecimentos ao Prof. Oscar de Lima não apenas por sua orientação durante este trabalho, mas também pelas inúmeras oportunidades que ele me proporcionou. Agradeço de uma forma muito especial também aos Profs. Jacobus Stewart e Steven Anlage, que me receberam em seus laboratórios de braços abertos e com os quais aprendi muito. Também de inestimável valor foi o total apoio que recebi do Centro de Tecnologia para Informática, CTI, aos quais agradeço pela confecção das máscaras utilizadas no processamento das microbobinas e pelos testes realizados nos chips prontos. Meu obrigado em particular para o Prof. Curt Hennies, que colocou toda a infra-estrutura do CTI à nossa disposição e cuja receptividade ao nosso projeto muito nos estimulou a seguir em frente.

À Fapesp, pelo suporte financeiro que tornou este trabalho possível.

Ao Prof. Yakov Kopelevich, por todas as sugestões e comentários que muito colaboraram para a conclusão deste trabalho.

A todo o pessoal do Laboratório de Pesquisa em Dispositivos (LPD), por terem me guiado no caminho da microlitografia. Em particular meus agradecimentos ao Ricardo (meu guru da litografia) e também ao Augusto, Xandão, Diniz, Luis Eugênio e Totó, pela paciência e por tantas vezes terem me ajudado, às vezes interrompendo o próprio trabalho.

Muito devo também a todos do Center for Superconductivity Research, University of Maryland, EUA, que fizeram meu estágio nos Estados Unidos ter sido tão agradável e por terem me ensinado tanto de física. As discussões que tive, diariamente, com Andy Schwartz e Doug Strachan foram de um valor inestimável. Também não posso me esquecer de Senta Karotke, minha amiga de todas as horas em terras alheias.

Aos colegas do LMBT, GPOMS e LMD cujas amizades me enriqueceram muito. Agradeço especialmente ao Juan Carlos e também Ricardo Urbano e Herculano Martinho por todas as discussões.

A todos aqueles cujo trabalho tornaram possível este trabalho: técnicos de todos os laboratórios e da criogenia, secretárias e auxiliares, o meu sincero muito obrigado.

Aos amigos próximos Eduardo Peres e Priscila Pessanha, e aos distantes (pelos menos atualmente) Alessandro Moura, Daniel Jonathan, Marcos Jardim e Marcelos (Terra Cunha e França), pela amizade que perdura a tanto anos e, às vezes, a milhares de quilômetros.

Gostaria de encerrar com o mais especial dos agradecimentos a Daniela, cujo amor e apoio foram mais importantes do que todo o resto junto.

Resumo

Nesta tese apresentamos estudos sobre a técnica de suscetibilidade AC, e sua aplicação no estudo de materiais supercondutores. Verificamos experimentalmente e generalizamos a formulação de uma lei de escala relacionando a amplitude e frequência do campo excitador, recentemente proposta. Correlacionamos os resultados obtidos a partir desta lei de escala com os cálculos feitos usando o modelo de Bean modificado para incluir efeitos de relaxação magnética. Demostramos assim a utilidade desta lei de escala para o estudo da densidade de corrente crítica e para testar modelos para a movimentação de vórtices. Tais métodos foram então empregados no estudo do segundo pico da magnetização em curvas de histerese magnética para uma amostra monocristalina de $ErBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Paralelamente a este trabalho, buscamos aplicar a técnica de suscetibilidade AC na caracterização das propriedades de diversos sistemas supercondutores já conhecidos ($Er_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, $Nd_{1-x}Pr_xBaCaCu_3O_7$ e $REBaSrCu_3O_7$), assim como na exploração do composto MgB_2 , recentemente descoberto ser supercondutor a 39 K.

Summary

In this thesis we present a study about the AC susceptibility technique, and its application in the study of superconducting materials. A recently proposed scaling law relating amplitude and frequency of the driven field was experimentally studied and generalized. The results from this analysis were correlated with calculations based in the Bean's critical state model, modified in order to include magnetic relaxation effects. The scaling law usefulness for critical current density studies and tests of vortex dynamics models, are demonstrated. Thus, such methods were applied in the discussion of the appearance of the second magnetization peak in hysteresis curves for an $ErBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystal sample. In parallel to this work, we applied the AC susceptibility in the characterization of several already known superconducting systems ($Er_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, $Nd_{1-x}Pr_xBaCaCu_3O_7$, and $REBaSrCu_3O_7$), as well as in the exploration of the compound MgB_2 , recently reported to superconduct at 39 K.

Conteúdo

1	Introdução	3
2	Aspectos básicos da técnica de suscetibilidade AC	5
2.1	Unidades	6
2.2	Comparando medidas magnéticas AC e DC	7
2.3	Fator de desmagnetização	9
2.4	Um suscetômetro real: a plataforma PPMS	10
2.4.1	A plataforma básica	11
2.4.2	A montagem ACMS	12
3	Suscetibilidade AC para amostras infinitas	15
3.1	Modelo de Bean	16
3.1.1	Harmônicos superiores da suscetibilidade	19
3.1.2	Validade do modelo de Bean	22
3.2	Suscetibilidade AC no regime de <i>flux flow</i>	23
3.3	Suscetibilidade AC associada à barreira superficial	25
3.4	Dissipação de energia em supercondutores	29
3.4.1	Comparando os diferentes mecanismos de dissipação em supercondutores	31
3.5	Sistemas granulares	32
4	Suscetibilidade AC para amostras finitas	37
4.1	Geometrias “unidimensionais”: discos, anéis e faixas	38
4.1.1	Comportamento universal da suscetibilidade AC	42
4.2	Geometrias bi- e tridimensionais	43

4.2.1	Universalidade da movimentação de fluxo e lei de escala para a suscetibilidade AC	49
5	Leis de escala para a suscetibilidade AC	51
5.1	Verificação da lei de escala de Brandt	52
5.2	Amostras de nióbio	57
5.3	Amostra YBCO-MTG	65
5.3.1	Reinterpretando a lei de escala	67
5.4	Amostra de $Er : 123$	82
5.4.1	Segundo pico na magnetização: idéias básicas e discussão.	82
5.4.2	Lei de escala e SPM	86
5.4.3	Testando a dependência do SPM com as dimensões da amostra	92
6	Aplicações básicas da suscetibilidade AC	99
6.1	Estudos substitucionais em supercondutores	100
6.1.1	Difração de neutrons no sistema $Er_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($0.0 \leq x \leq 0.3$): Possíveis vacâncias de oxigênio nos planos de CuO_2	101
6.1.2	Supressão da supercondutividade com a substituição de Pr no sistema $Nd_{1-x}Pr_xBaCaCu_3O_7$	106
6.1.3	Forte dependência da temperatura da transição supercondutora com o raio iônico da terra rara na série $RBaSrCu_3O_7$ ($R = Y, Dy, Nd, La$)	109
6.2	Determinação da anisotropia do composto MgB_2	113
7	Conclusões e perspectivas	119
7.1	Análise da lei de escala	119
7.1.1	Possibilidades futuras	120
7.2	Estudos substitucionais em supercondutores	122
7.3	Estudos sobre o novo supercondutor MgB_2	123
7.3.1	Perspectivas futuras	123
7.4	Desenvolvimento de ponte de microbobinas	124
7.4.1	Perspectivas Futuras	126

Capítulo 1

Introdução

Medidas de suscetibilidade AC têm sido extensivamente utilizadas no estudo de diversos sistemas magnéticos, em particular supercondutores. Sua simplicidade experimental, aliada a grande sensibilidade e baixo custo, fez desta técnica um dos modos mais usuais de determinar a temperatura crítica de materiais supercondutores, por exemplo. Sua utilidade, porém, não se resume apenas a isso de forma alguma. Importantes informações sobre a microestrutura e homogeneidade da amostra também podem ser obtidas, assim como características intrínsecas como densidade de corrente crítica, profundidade de penetração AC, entre outras. Desta forma, a suscetibilidade AC é de enorme utilidade na caracterização de materiais supercondutores. A sua aplicação no estudo da dinâmica de vórtices nestes materiais é um pouco menos comum, mas esta técnica também tem se revelado muito útil, fornecendo importantes informações também nesta área.

Neste trabalho, estudamos a técnica de suscetibilidade AC com duas finalidades distintas. Em uma discussão mais fundamental da técnica em si, verificamos experimentalmente e generalizamos uma lei de escala relacionando amplitude e frequência do campo excitador, originalmente proposta por Brandt [26]. Discutimos ainda a possibilidade de correlacioná-la com resultados derivados do modelo de estado crítico de Bean [13] e, assim, utilizá-la para a determinação da densidade de corrente crítica. Analisamos ainda a sua possível relação com o segundo pico da magnetização, observado nas curvas de histerese para certas amostras supercondutoras. Uma segunda linha de trabalho foi desenvolvida em colaboração com o Dr. V.P.S. Awana no estudo do efeito de diferentes dopantes em sistemas supercondutores. Neste caso, as medidas de suscetibilidade AC foram utilizadas como um simples instrumento para a caracterização destes materiais. Juntamente com estes resultados,

que seriam nossa contribuição original, buscamos neste trabalho revisar as características básicas da técnica de suscetibilidade AC. Evidentemente esta revisão não tem a pretensão de ser completa, mas esperamos que seja um ponto de partida para aqueles que buscam conhecer um pouco mais desta técnica. Também não é possível explorar, com todo o detalhe que merecem, todos os trabalhos importantes sobre este tema, e muitos cálculos são apresentados de uma forma bastante sucinta. Evidentemente, dentre todos os trabalhos apresentados, daremos um tratamento diferenciado aos trabalhos que desenvolvemos durante nosso doutoramento.

Esta tese está organizada basicamente em três blocos. Na primeira parte apresentamos os conceitos básicos da suscetibilidade AC em geral. A seguir, passamos para o caso particular de amostras supercondutoras infinitas, onde exploraremos os modelos básicos que descrevem a suscetibilidade AC nestes materiais em diversas situações. Finalmente exploramos os cálculos mais recentes para amostras finitas e, a partir destes resultados, introduzimos a proposta inicial da lei de escala para medidas de suscetibilidade. No segundo bloco do trabalho, exploramos a validade e utilidade desta lei de escala. Para tanto, apresentamos uma generalização da lei de escala proposta por Brandt. Para checar sua validade, aplicamos o escalonamento proposto a um conjunto de medidas para diferentes amostras, representativas de diferentes tipos de supercondutores do tipo-II. Encerramos então esta parte do trabalho apresentando uma breve discussão sobre a aplicação desta lei de escala no estudo do segundo pico da magnetização. Finalmente, no último bloco desta tese, apresentamos um conjunto de trabalhos onde aplicamos a técnica de suscetibilidade AC na caracterização de materiais supercondutores. A maior parte destes trabalhos foram realizados em colaboração com o Dr. Awana e versam sobre estudos substitucionais em supercondutores. Fechamos esta tese de doutoramento discutindo algumas perspectivas de trabalho futuro e concluindo os principais resultados apresentados.

Capítulo 2

Aspectos básicos da técnica de suscetibilidade AC

O termo “suscetibilidade” foi introduzido por William Thomson (Lorde Kelvin) em *Reprint of Papers on Electrostatics and Magnetism* [125], de 1872. Segundo a definição de Kelvin,

A suscetibilidade magnética de uma substância isotrópica é definida como a intensidade da magnetização adquirida por uma *barra fina e infinita* desta substância, quando colocada *axialmente* em um campo uniforme *de força magnética unitária*.

Esta definição é simples, porém completa. Ao especificar a forma da amostra como foi feito, eliminamos a necessidade de considerar os campos de desmagnetização. Já a exigência de um campo magnético unitário leva à definição de suscetibilidade como a razão entre a magnetização M e o campo aplicado H .

A medida da suscetibilidade é feita indutivamente, podendo ser realizada utilizando campos magnéticos estáticos (DC) ou alternados (AC). A montagem experimental mais utilizada para estas medidas é formada por um circuito primário com um solenóide que produz um campo alternado excitador sobre a amostra, e um circuito secundário formado pelas bobinas de medida e compensadora [67]. Um magneto externo que forneça um campo DC também é normalmente utilizado. As bobinas de medida e compensadora são enroladas em oposição e montadas em série, concentricamente com a bobina excitadora. Desta forma, o sistema é calibrado para que, sem que tenhamos nenhuma amostra no sistema, o sinal induzido no secundário pelo campo alternado seja zero. Isto é feito para

eliminar o sinal uniforme produzido pelo campo excitador e também parte do ruído gerado por fontes externas, restando-nos apenas o sinal da amostra. Ao medir-se a voltagem induzida no circuito secundário, seleciona-se apenas o sinal cuja frequência seja igual ou um múltiplo inteiro da frequência do campo excitador. Assim, qualquer ruído que possua uma frequência diferente daquela utilizada para o campo excitador não interfere na medida do sinal da amostra. Esta seleção em frequência, juntamente com a cuidadosa calibração do circuito secundário, faz com que a suscetibilidade AC seja uma técnica de extrema sensibilidade.

Depois de feita a compensação das bobinas, inserimos a amostra no interior da bobina de medida e aplicamos o campo excitador AC (um campo DC pode ser utilizado para variar a região do diagrama $H \times T$ que está sendo estudada). Considerando o campo excitador da forma $H_a = h_0 \cos(\omega t)$, a magnetização induzida na amostra, no caso de uma resposta linear, será então

$$\begin{aligned} M &= M_0 \cos(\omega t - \phi) \\ &= M_0 \cos \phi \cos \omega t + M_0 \sin \phi \sin \omega t. \end{aligned} \quad (2.1)$$

Podemos reescrever esta expressão em termos da amplitude do campo excitador

$$\begin{aligned} M &= h_0 \chi' \cos \omega t + h_0 \chi'' \sin \omega t, \\ \chi' &= \frac{M_0}{h_0} \cos \phi, \quad \chi'' = \frac{M_0}{h_0} \sin \phi \end{aligned} \quad (2.2)$$

ou ainda, na notação complexa:

$$M = \chi h_0 e^{i\omega t} \quad (2.3)$$

onde χ é a suscetibilidade complexa

$$\chi = \chi' + i\chi'' = \chi_0 e^{i\phi} \quad (2.4)$$

A componente real da suscetibilidade descreve a parte indutiva da magnetização e está associada, nos supercondutores, às correntes de blindagem na amostra. Já a componente imaginária está associada a processos dissipativos no material.

2.1 Unidades

A suscetibilidade magnética é, a princípio, uma quantidade adimensional. No entanto, no sistema CGS a suscetibilidade é muitas vezes expressa [67] como emu , $emu \cdot cm^{-3}$, $emu \cdot cm^{-3} \cdot Oe^{-1}$, ou

$emu \cdot g^{-1} \cdot Oe^{-1}$ (onde, no último, caso temos a suscetibilidade calculada a partir do momento magnético por unidade de massa e não de volume, que seria a magnetização propriamente dita; esta definição pode parecer estranha, mas é conveniente em muitos casos e pode ser convertida a unidades mais usuais facilmente se a densidade do material é conhecida). Estas estranhas unidades para a suscetibilidade no sistema CGS vêm da ambigüidade das unidades para a magnetização M . No sistema CGS, o campo magnético H é expresso em Oe (dimensional e numericamente equivalente a G). Já a magnetização, quando escrita como $4\pi M$, também está em G ; já quando expressa apenas como M (isto é, como o momento magnético por unidade de volume) sua unidade seria $erg \cdot G^{-1} \cdot cm^{-3}$ (convencionalmente expressa como $emu \cdot cm^{-3}$). Esta unidade é dimensionalmente mas não numericamente equivalente a G . Em alguns casos a suscetibilidade no sistema CGS é escrita como $4\pi\chi$ (adimensional), que é igual a suscetibilidade no sistema SI (também adimensional).

Vale lembrar que para transformar expressões do sistema SI para o CGS (emu ou gaussiano) deve-se proceder as seguintes substituições:

$$H_{SI} \rightarrow \frac{1}{(4\pi\mu_0)^{1/2}} H_{emu}, \quad \frac{1}{(4\pi\mu_0)^{1/2}} H_G \quad (2.5)$$

$$J_{SI} \rightarrow \left(\frac{4\pi}{\mu_0}\right)^{1/2} J_{emu}, \quad (4\pi\epsilon_0)^{1/2} J_G \quad (2.6)$$

$$M_{SI} \rightarrow \left(\frac{4\pi}{\mu_0}\right)^{1/2} M_{emu}, \quad \left(\frac{4\pi}{\mu_0}\right)^{1/2} M_G \quad (2.7)$$

$$\chi_{SI} \rightarrow 4\pi\chi_{emu}, \quad 4\pi\chi_G \quad (2.8)$$

considerando que no sistema gaussiano $\mu_0 = \epsilon_0 = 1$, e no emu $\mu_0 = 1$, $\epsilon_0 = 1/c^2$ e ainda que $c^{-2} = \mu_0\epsilon_0$. Para uma discussão mais completa sobre os sistemas de unidades no eletromagnetismo, ver apêndice da Ref. [79]. Ao longo deste trabalho procuraremos trabalhar sempre no sistema gaussiano.

2.2 Comparando medidas magnéticas AC e DC

Tanto medidas de suscetibilidade AC quanto de magnetização DC baseiam-se na utilização de uma bobina de detecção para medir a variação do fluxo magnético devido à presença da amostra. Esta semelhança traz a idéia errônea de que ambas as técnicas fornecem informações equivalentes, ou pelo menos similares. No entanto, a semelhança entre as técnicas é apenas superficial e basta uma pequena reflexão para se ver quão diferentes elas são.

Num magnetômetro DC, tal como o magnetômetro de amostra vibrante (VSM) ou o magnetômetro SQUID, a variação do fluxo magnético na bobina de medida é obtida pela movimentação da amostra em relação a esta bobina. A voltagem induzida na bobina é então proporcional ao momento magnético da amostra, *que permanece constante durante a medida*. Já na técnica de suscetibilidade AC a amostra permanece parada no centro da bobina de medida e a variação do fluxo nesta bobina vem da resposta da amostra a um campo magnético alternado $h(t)$. Assim, a voltagem induzida na bobina é proporcional não ao *valor absoluto* do momento magnético da amostra, mas sim à *variação do momento magnético* induzido pelo campo alternado (ou seja, quão suscetível seria a magnetização a mudanças no campo magnético aplicado). Isso pode ser visualizado na figura 2.1 onde mostramos uma medida AC realizada utilizando também um campo estático H_{dc} . A medida AC detecta então a variação da magnetização com o campo aplicado que, no limite da amplitude do campo AC indo a zero, leva a dM/dH . A interpretação do resultado da medida AC como sendo proporcional a inclinação da curva de magnetização DC, no entanto, só é válida se o inverso da frequência do campo excitador é muito menor que a escala de tempo característica dos processos de relaxação que ocorram na amostra estudada. Esta é uma das principais diferenças entre as técnicas AC e DC: como nas técnicas AC nós estamos medindo a variação da magnetização, seus resultados refletem diretamente a dinâmica do sistema magnético estudado. A obtenção de informações sobre os processos dinâmicos em materiais magnéticos surge portanto como uma aplicação natural dessa técnica, provendo resultados não diretamente acessíveis via medidas DC. Assim, medidas da suscetibilidade complexa $\chi = \chi' + i\chi''$ fornecem, por exemplo, informações sobre os processos dissipativos do sistema (a componente fora de fase χ'' surge exatamente desses processos); a dependência da suscetibilidade com a frequência permite o estudo de processos de relaxação e a determinação das suas escalas de tempo características; a presença de harmônicos superiores da suscetibilidade indicam uma dinâmica não linear, e assim por diante. Voltaremos a estes pontos mais tarde.

Outra questão importante que surge está relacionada com a interpretação da componente real χ' da suscetibilidade. A componente real mede a resposta indutiva da amostra, estando relacionada com a magnetização. Esta afirmação, no entanto, pode induzir a se pensar a componente real da suscetibilidade complexa como sendo igual a suscetibilidade DC $\chi_{dc} \equiv M/H$, o que não é geralmente verdade. Apenas no limite de resposta linear é que temos de fato $\chi' \rightarrow \chi_{dc}$ para $\omega \rightarrow 0$ [67].

Para concluirmos esta seção, gostaríamos de chamar a atenção para uma diferença entre as téc-

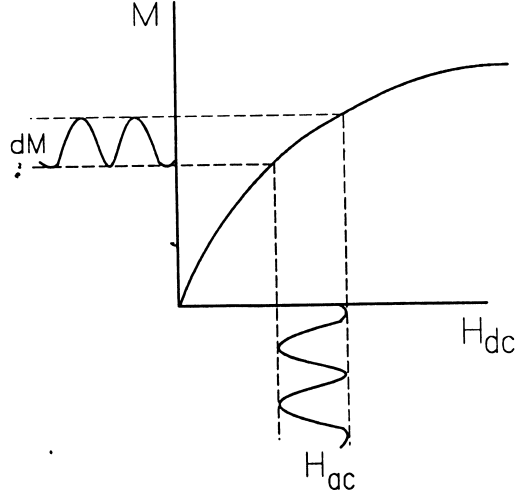


Figura 2.1: Curva de magnetização esquemática mostrando uma medida ac feita com campo magnético estático aplicado.

nicas AC e DC quando aplicadas ao estudo de supercondutores. Medidas da magnetização DC em supercondutores, quando realizadas com a amostra resfriada a campo zero (ZFC), medem a blindagem do campo magnético (exclusão de campo) durante o aquecimento da amostra; já uma medida FC (amostra resfriada com campo aplicado) mede a expulsão de campo durante o resfriamento da amostra. No caso de uma medida AC, sendo a amplitude do campo excitador pequena o suficiente para não produzir movimento de fluxo, sempre mede a blindagem de campo pela distribuição de correntes na amostra. Ainda que fruto usualmente de um abuso de linguagem, ocorre as vezes de referir-se ao estado de blindagem total do campo alternado em medidas AC como sendo o estado Meissner (que corresponderia à expulsão total de campo), o que não é correto.

2.3 Fator de desmagnetização

A definição de suscetibilidade como a razão entre magnetização e campo magnético aplicado é baseada em uma amostra com *fator de desmagnetização zero*. A questão que surge então é de como podemos obter a suscetibilidade real de um material a partir de uma amostra com fator de desmagnetização finito. O que nós obtemos experimentalmente neste caso é a chamada *suscetibilidade*

externa, definida como

$$\chi_{ext} = \frac{dM}{dH_a} \quad (2.9)$$

onde H_a é o campo aplicado. Esta é uma *propriedade da amostra*, já que seu valor depende da geometria da amostra. Podemos obter a suscetibilidade interna, esta sim propriedade do material, se considerarmos o campo de desmagnetização da amostra

$$\chi = \frac{dM}{dH}, \quad \vec{H} = \vec{H}_a - N\vec{M} \quad (2.10)$$

onde N é o tensor de desmagnetização. Este tensor depende da geometria da amostra e apenas para algumas configurações possui uma forma analítica conhecida. Uma vez conhecido N , ainda que de forma aproximada, podemos então obter a suscetibilidade interna a partir da externa, obtida experimentalmente:

$$\chi = \frac{\chi_{ext}}{1 - N\chi_{ext}} \quad (2.11)$$

Mas sabemos que a suscetibilidade é uma grandeza complexa. Separando as componentes real e imaginária, podemos escrever a partir de (2.11):

$$\chi' = \frac{\chi'_{ext} - N(\chi'^2_{ext} + \chi''^2_{ext})}{N^2(\chi'^2_{ext} + \chi''^2_{ext}) - 2N\chi'_{ext} + 1} \quad (2.12)$$

$$\chi'' = \frac{\chi''_{ext}}{N^2(\chi'^2_{ext} + \chi''^2_{ext}) - 2N\chi'_{ext} + 1} \quad (2.13)$$

A separação exata das partes real e imaginária da resposta da amostra é indispensável para que possamos obter resultados quantitativamente acurados para a suscetibilidade. Experimentalmente, esta talvez seja a maior dificuldade a ser superada para se obter um valor confiável para a suscetibilidade.

2.4 Um suscetômetro real: a plataforma PPMS

Nas seções anteriores, apresentamos de uma forma bastante concisa os conceitos básicos do funcionamento de um sistema experimental genérico para medidas de suscetibilidade AC. Antes de entrarmos na discussão mais específica da suscetibilidade magnética dos materiais supercondutores, vamos olhar com mais detalhes um suscetômetro real: a plataforma PPMS (*Physical Property Measurement System*), produzida pela Quantum Design. Tal discussão satisfaz, de fato, dois objetivos: serve como um exemplo da implementação efetiva das idéias apresentadas anteriormente e apresenta o sistema

experimental utilizado ao longo de todo este trabalho. Devemos chamar a atenção, entretanto, para o fato da plataforma PPMS não ser apenas um suscetômetro, mas sim um sistema bastante versátil que permite a realização de diversas outras medidas. Desta forma uma apresentação mais geral do sistema é necessária antes de partirmos para o sistema de medida de suscetibilidade em si.

O PPMS é um sistema que permite a realização de diversos tipos de medidas, desde medidas de transporte até medidas de magnetização e suscetibilidade AC e DC. Sua grande versatilidade vem do fato dele ser constituído por duas partes: uma plataforma básica e sistemas específicos que podem ser inseridos em sua câmara de amostra. Assim, para fazer uma medida de resistividade, por exemplo, inserimos um suporte de amostra onde soldamos os contatos elétricos entre a amostra e um conector. Este suporte é então conectado diretamente a um plug que leva o sinal para o equipamento de aquisição de dados. Um outro módulo semelhante permite a medida de calor específico. Já para medidas de suscetibilidade nós temos de utilizar uma montagem maior. Primeiramente inserimos uma peça com a bobina excitadora, bobinas de medida e compensadora e, só então, a amostra é posicionada no interior deste conjunto de bobinas. Este caráter “modular” permite ainda ao usuário montar o seu próprio sistema de medida utilizando o PPMS como plataforma básica, responsável apenas pelo controle de temperatura e campo magnético e, eventualmente, aquisição de dados.

2.4.1 A plataforma básica

O sistema básico do PPMS é formado pelo dewar externo (com capacidade para 30 litros de hélio líquido) e pelo “probe” que fica imerso neste banho de hélio. É no probe que estão montados os sistemas básicos do PPMS: o magneto supercondutor de NbTi (capaz de produzir campos de até 9 T), o sistema básico de controle de temperatura (que trabalha entre 2 e 300 K), o medidor do nível de hélio, linhas de gás e o conector elétrico para as diferentes montagens (ver figura 2.2). O probe contém uma parede dupla evacuada que isola a câmara da amostra do banho de hélio. A parte inferior da câmara da amostra é feita em cobre para criar uma região de temperatura uniforme em torno do ponto onde se posicionará a amostra.

Na base da câmara da amostra encontra-se um conector de 12 pinos onde são conectadas as diversas montagens que podem ser instaladas no sistema. Os pinos deste conector são diretamente ligados a um outro conector na cabeça do probe, podendo ser então ligados ao sistema PPMS ou a outros sistemas de aquisição de dados (lock-in, osciloscópio, voltímetros, etc.). Imediatamente

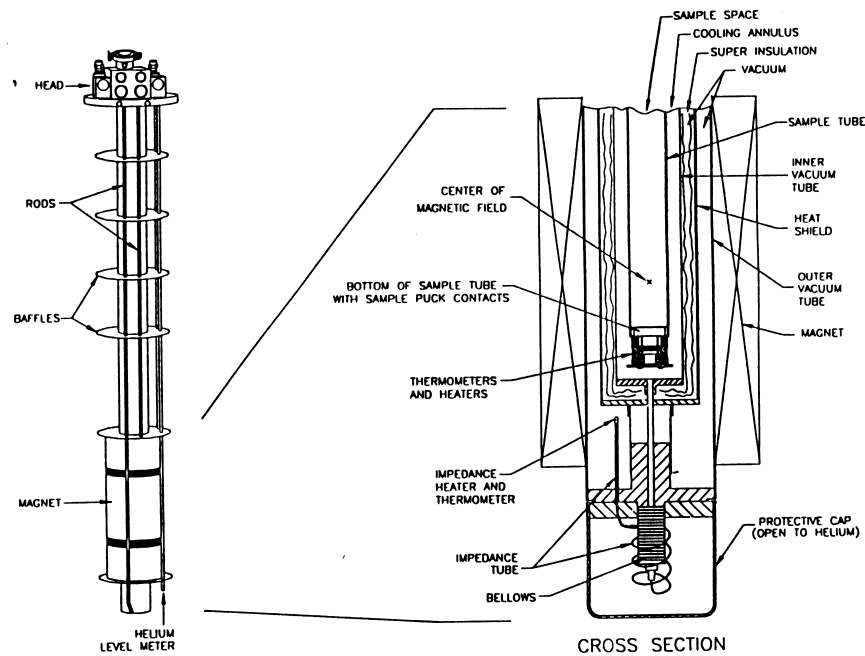


Figura 2.2: Esquema mostrando o probe da plataforma PPMS (extraído da Ref. [110])

abaixo do conector, na base da câmara de amostra, estão colocados dois termômetros e um aquecedor, utilizados no controle da temperatura da amostra. Há ainda uma região entre a parede evacuada e a câmara da amostra (*cooling annulus*), onde se injeta hélio para, juntamente com o aquecedor colocado no fundo da câmara, controlar a temperatura da amostra.

2.4.2 A montagem ACMS

Dentre as opções de montagem possíveis do PPMS, aquela que mais nos interessa (além da montagem das microbobinas) é o chamado ACMS (*AC Measurement System*). O ACMS é um componente que contém um sistema de bobinas excitadora e de detecção utilizadas tanto para medidas de suscetibilidade AC quanto para magnetização DC (ver figura 2.3). Ele é montado diretamente na câmara de amostra do PPMS, sendo ligado no conector de 12 pinos da base da câmara de amostra. O espaço para o posicionamento da amostra fica na região de campo uniforme do magneto supercondutor do PPMS, permitindo a aplicação de campos DC (assim como controle da temperatura) através dos métodos convencionais do PPMS. Para posicionar a amostra dentro da bobina excitadora, ela é montada em um canudo plástico encaixado na ponta inferior de uma haste rígida e fina, que por sua

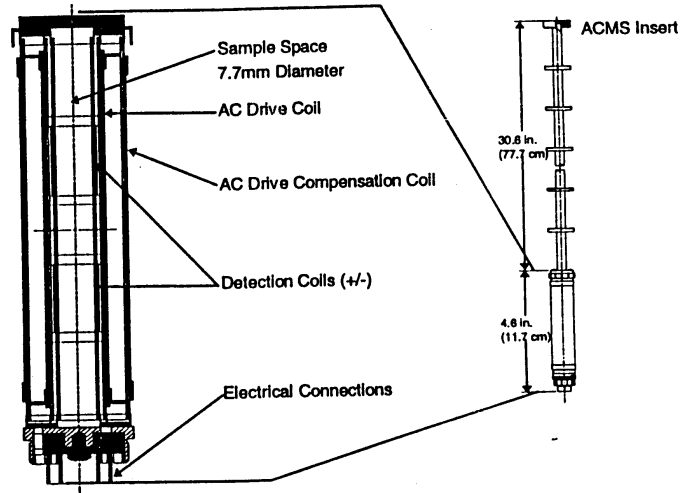


Figura 2.3: Equema da montagem ACMS (extraído da Ref. [110]).

vez tem presa sua ponta superior a um motor que permite a movimentação longitudinal da amostra.

A bobina excitadora do ACMS é enrolada longitudinalmente envolvendo o conjunto de bobinas de detecção e é capaz de gerar campos alternados entre 0.1 e 17 Oe em uma faixa de frequência de 10 Hz a 10 kHz . O sistema de detecção é constituído de dois conjuntos de bobinas enroladas em oposição (para separar o sinal da amostra do background uniforme) ligadas em série e separadas por alguns centímetros.

Para realizar medidas DC, aplica-se um campo constante na região da amostra e esta é então movida rapidamente através dos dois conjuntos de bobinas, induzindo assim uma voltagem nelas de acordo com a Lei de Faraday. Este método é conhecido como *método de extração*. Já nas medidas AC, a amostra fica posicionada no centro de um conjunto de bobinas enquanto um campo alternado é aplicado. Mede-se então a resposta da amostra a essa variação do campo excitador.

O sistema possui ainda uma bobina de compensação fora da bobina excitadora, enrolada em oposição à mesma. Sua função é basicamente cancelar o campo excitador fora da região da amostra e assim reduzir a interação do sistema com componentes metálicos dispostos fora da região de medida. A calibração destas bobinas é feita individualmente em cada sistema ACMS. Finalmente, há ainda duas bobinas de baixa indutância ligadas em série e colocadas no centro das bobinas de detecção. Estas bobinas contêm uma única espira e sua função é auxiliar a calibração da fase e amplitude nas

medidas AC. Desta forma, o ACMS consegue fazer a separação das componentes real e imaginária da amostra com grande acuidade, o que é vital nesta técnica.

No ACMS a amostra fica posicionada a alguns centímetros acima da base da câmara de amostra, onde está colocado o termômetro do sistema. A distância entre a amostra e o termômetro, assim como a presença de todo o sistema ACMS, faz com que a temperatura medida por este termômetro apresente um desvio significativo da temperatura real da amostra. Para reduzir este desvio, o ACMS tem um outro termômetro montado diretamente no suporte do seu conjunto de bobinas, que fornece uma medida muito mais precisa da temperatura da amostra. Pode-se então escolher qual o termômetro a ser usado durante as medidas (na prática usa-se quase que exclusivamente o termômetro do sistema ACMS).

Capítulo 3

Suscetibilidade AC para amostras infinitas

Tendo visto as características gerais da suscetibilidade AC no capítulo anterior, vamos agora tratar o caso particular de amostras supercondutoras infinitas. O motivo básico para restringir a discussão a amostras infinitas de geometria simples visa simplificar o tratamento matemático, evitando problemas com fatores de desmagnetização (em muitos casos) e condições de contorno complicadas. As geometrias de amostra que exploraremos serão basicamente a placa e o cilindro infinitos, ambas levando a problemas essencialmente unidimensionais que, em geral, podem ser resolvidos exatamente. Mais adiante trataremos geometrias mais realistas.

A referência a “amostra supercondutora” também pode dar uma idéia um tanto quanto falsa de que o problema a ser atacado é completamente definido pelo adjetivo “supercondutora”. De fato, não temos um único modelo para a suscetibilidade que descreva um supercondutor qualquer para valores arbitrários de temperatura e campo magnético aplicado. O que temos são aproximações para as situações onde a resposta eletromagnética da amostra é dominada pela superfície da amostra ou pelo seu interior, pela movimentação de vórtices ou seu aprisionamento; no caso de amostras policristalinas a situação é diferente daquela de amostras monocristalinas. A suscetibilidade de qualquer amostra real certamente é muito mais complexa do que os modelos que serão apresentados aqui. Ainda assim, dentro de certos limites, as teorias existentes descrevem muito bem os resultados experimentais e fornecem informações razoavelmente precisas sobre as propriedades do material.

Vamos então apresentar a seguir os principais resultados para certas situações específicas. Primeira-

mente trataremos do caso mais comum: um supercondutor com centros de aprisionamento suficientemente fortes para que a resposta da amostra seja basicamente histerética e os modelos de estado crítico possam ser aplicados com segurança. A seguir, veremos o caso de um supercondutor ideal, sem centros de aprisionamento. A amostra será então considerada como sendo um meio viscoso ao escoamento destes vórtices¹. Por fim, consideraremos a situação em que nem o aprisionamento nem a movimentação de vórtices é relevante, sendo a suscetibilidade dominada pela presença de uma barreira superficial, que se opõe a entrada ou saída de vórtices da amostra durante um ciclo do campo excitador AC. Encerrando este capítulo, apresentaremos o caso de amostras policristalinas de supercondutores de alta temperatura crítica, que apresentam grandes efeitos de granularidade.

3.1 Modelo de Bean

Um dos primeiros modelos, aliás muito bem sucedido e amplamente utilizado atualmente, para descrever a magnetização de supercondutores do tipo II foi introduzido em 1964 por C. P. Bean[13]. Neste modelo, considera-se que a densidade de corrente em um supercondutor ou assume seu valor crítico J_c (na região em que o campo magnético externo penetra na amostra), ou é zero (no interior da amostra blindado do campo externo, onde o campo local é nulo). Qualquer alteração no campo magnético leva a um rearranjo das correntes na amostra de tal forma a satisfazer a condição acima, o que leva a um comportamento fortemente histerético. Se considerarmos agora que a densidade de corrente crítica é independente do campo magnético local temos, a partir da lei de Ampère, que o perfil da densidade de fluxo na amostra é linear, como esquematizado na figura 3.1, para o caso de uma placa infinita de espessura d . A profundidade de penetração do perfil de campo crítico no interior da amostra, L_p , é dada então por

$$L_p = \frac{c}{4\pi} \frac{h_0}{J_c} \quad (3.1)$$

Assim, a penetração completa da amostra, isto é $L_p = d$, só ocorre para $h^* = (4\pi/c)J_c d$. Para campos aplicados inferiores a este campo de penetração completa h^* , temos então a penetração de campo apenas na periferia da amostra (perfil vermelho). Já para $h_0 \geq h^*$ temos a penetração total da amostra (perfis roxo e azul).

¹Este mesmo modelo aplica-se também para um material real no regime de *flux flow*, onde os vórtices são liberados dos centros de aprisionamento e movem-se livremente pela amostra.

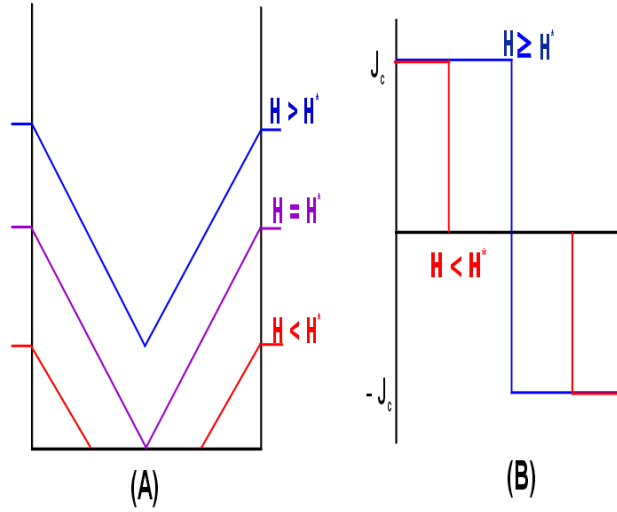


Figura 3.1: Representação esquemática do perfil de campo no interior da amostra (A) e da correspondente densidade de corrente (B) para um placa infinita com campo magnético aplicado paralelamente a sua superfície.

Com estas considerações, é possível então calcular analiticamente a magnetização para algumas geometrias simples, tais como lâminas e cilindros infinitos. No caso de um campo aplicado periódico $h = h_0 \cos(\omega t)$, tal como numa medida AC, o procedimento exposto acima nos fornece a magnetização instantânea $M(t)$. Para analisar a resposta $M(t)$ a uma excitação periódica $h(t)$ naturalmente aplica-se a análise de Fourier, assumindo então que

$$M(t) = h_0 \sum_{n=1}^{\infty} [\chi'_n \cos(n\omega t) + \chi''_n \sin(n\omega t)] \quad (3.2)$$

onde $\chi_n = \chi'_n + i\chi''_n$ ($n = 1, 2, 3, \dots$) é o n -ésimo harmônico da suscetibilidade. Tais harmônicos podem ser calculados a partir das integrais de Fourier das equações completas da magnetização em função do campo magnético [77]:

$$\chi'_n = \frac{1}{\pi h_0} \int_0^{2\pi} M(t) \cos(n\omega t) d(\omega t) \quad (3.3)$$

$$\chi''_n = \frac{1}{\pi h_0} \int_0^{2\pi} M(t) \sin(n\omega t) d(\omega t) \quad (3.4)$$

Não entraremos nos detalhes destes cálculos aqui. Os resultados para o harmônico fundamental $n = 1$ no caso de placas e cilindros infinitos foram sumarizado por Goldfarb *et al.* [67], e por conveniência

estão reproduzidas abaixo. Vale ressaltar que tais resultados foram obtidos assumindo tacitamente que correntes de transporte, campo magnético DC, campo crítico inferior H_{c1} , e barreira superficial são todos zero.

- Placa infinita de espessura $2d$, campo aplicado paralelamente à superfície:

$(h_0 \leq h^*) :$

$$\chi' = -1 + \frac{x}{2}, \quad (3.5)$$

$$\chi'' = \frac{2x}{3\pi}. \quad (3.6)$$

$(h_0 \geq h^*) :$

$$\chi' = \frac{1}{\pi} \left\{ \left(-1 + \frac{x}{2} \right) \cos^{-1} \left(1 - \frac{2}{x} \right) + \left[-1 + \frac{4}{3x} - \frac{4}{3x^2} \right] (x-1)^{1/2} \right\}, \quad (3.7)$$

$$\chi'' = \frac{1}{3\pi} \left(\frac{6}{x} - \frac{4}{x^2} \right), \quad (3.8)$$

onde $x \equiv h_0/h^*$, e $h^* = (4\pi/c)dJ_c$ é o campo externo necessário para que o perfil de campo crítico atinja o centro da amostra.

- Cilindro infinito de raio d , campo magnético axial²:

$(h_0 \leq h^*) :$

$$\chi' = -1 + x - \frac{5x^2}{16}, \quad (3.9)$$

$$\chi'' = \frac{1}{3\pi} (4x - 2x^2) \quad (3.10)$$

$(h_0 \geq h^*) :$

$$\chi' = \frac{1}{\pi} \left(-1 + x - \frac{5x^2}{16} \right) \cos^{-1} \left(1 - \frac{2}{x} \right) + \left[-\frac{19}{12} + \frac{5}{8}x + \frac{1}{x} - \frac{2}{3x^2} \right] (x-1)^{1/2}, \quad (3.11)$$

$$\chi'' = \frac{1}{3\pi} \left(\frac{4}{x} - \frac{2}{x^2} \right) \quad (3.12)$$

²Ao contrário do caso paralelo, não há uma solução exata para a situação de um cilindro infinito com o campo aplicado perpendicularmente ao seu eixo. Mas, de acordo com o método de Zenkevitch *et al.* [137], as expressões para a suscetibilidade externa (não corrigida pelo fator de desmagnetização) para a configuração de campo transversal ao cilindro são simplesmente as mesmas que foram encontradas no caso do campo aplicado axialmente, multiplicadas por dois (desde que utilize-se o campo característico correto neste caso, que seria $h^* = 2J_c d/\pi$).

onde $x \equiv h_0/h^*$, $h^* = (4\pi/c)dJ_c$. Apesar de em certos casos as expressões acima serem razoavelmente complexas e raramente utilizadas diretamente, chama a atenção o fato de que o valor da suscetibilidade depende unica e exclusivamente da variável $x \equiv h_0/h^*$ em ambos os casos apresentados aqui. De fato, como veremos mais adiante, esta afirmação permanece válida mesmo quando consideramos geometrias mais complexas. O que muda de uma certa configuração para outra é o campo característico h^* . Este é o ponto de origem para toda a discussão sobre leis de escala para medidas de suscetibilidade que apresentaremos mais adiante.

3.1.1 Harmônicos superiores da suscetibilidade

O modelo de estado crítico proposto por Bean fornece um mecanismo para a geração de harmônicos superiores da suscetibilidade, rapidamente apresentado na seção anterior. Uma vez que se tenha $M(t)$ em função do campo $H(t)$, a eq. 3.3 nos permite, em princípio, calcular todos os harmônicos. Isso pode ser feito analiticamente ou numericamente, para certas geometrias simples. Mesmo nestes casos, uma solução geral não é simples de ser obtida. Vamos nos limitar ao caso mais simples, em que a amplitude do campo excitador é menor que o campo de penetração completa, $h_0 < h^*$. Utilizando as equações de Bean para $M(H)$, podemos então calcular os harmônicos superiores da suscetibilidade para, por exemplo, uma placa infinita com um campo magnetico AC aplicado paralelamente a sua superfície [77]:

$$\chi'_n = 0 \quad (n > 1), \quad (3.13)$$

$$\chi''_n = 0 \quad (n \text{ par}), \quad (3.14)$$

$$\chi''_n = (-1)^{(n+1)/2} \frac{2x}{[\pi(n-2)n(n+2)]} \quad (n \text{ ímpar}) \quad (3.15)$$

onde $x \equiv h_0/h^*$ é exatamente a mesma variável que determina o harmônico fundamental, como mostramos anteriormente. Observem que, no formalismo de Bean, os harmônicos pares são identicamente nulos. Tal situação não é alterada no caso em que $h_0 > h^*$, ou quando temos um campo DC sobreposto ao campo excitador [82]. Neste último caso, surge uma discrepância entre a previsão teórica e os resultados experimentais. De fato, apenas os harmônicos ímpares são observados em supercondutores clássicos, mesmo quando campos magnéticos estáticos são sobrepostos ao campo excitador AC. Nos supercondutores de alta temperatura crítica, experimentos similares mostram que para campos puramente alternados observam-se, novamente, apenas os harmônicos ímpares. Já

quando estes materiais são medidos na presença de um campo adicional DC, observa-se também a geração dos harmônicos pares. Tais resultados independem da amostra ser mono- ou policristalinas ou estar na forma de pó [129, 80, 82], e indicam a limitação do modelo de Bean e a necessidade do desenvolvimento de novos modelos para a descrição da geração de harmônicos superiores da suscetibilidade para amostras de alta temperatura crítica.

Jeffries *et al.* [80] analisaram a não-linearidade da resposta magnética de amostras granulares de YBCO e propuseram um modelo de loops de supercorrentes com quantização de fluxo através de junções Josephson. Também para amostras multiconectadas, um dos modelos mais populares foi proposto por Ishida e Mazaki [78]. Xenikos e Lemberg [129] associaram a resposta observada em cristais de YBCO com a ocorrência de arrastamento de fluxo. Shatz *et al.* [118] derivaram expressões analíticas para a suscetibilidade harmônica utilizando o modelo de estado crítico, mas sem adotar nenhuma dependência específica da corrente crítica com o campo³. Talvez o resultado mais interessante apresentado por Shatz *et al.* seja a proposta de que os harmônicos superiores dependem de um único parâmetro δ , que seria uma medida do quanto a perturbação provocada pelo campo alternado penetra na amostra (equivalente ao parâmetro x no modelo de Bean usual). Num trabalho semelhante, Ji *et al.* [82] estenderam o modelo de Bean ao levar em conta a dependência da corrente crítica com o campo magnético, o que permite explicar o aparecimento dos harmônicos pares da suscetibilidade também. Neste trabalho de Ji *et al.* são obtidas expressões analíticas para os loops de magnetização (histeréticos) utilizando um modelo de Kim simplificado, onde a corrente crítica é inversamente proporcional ao campo magnético local. A partir destes resultados foram calculados numericamente os harmônicos χ_n . Um detalhado estudo experimental feito por Ishida e Goldfarb [77] mostrou boa concordância com as previsões de Ji *et al.*

Ao considerar a dependência da densidade de corrente crítica com o campo magnético, o modelo de Ji *et al.* fornece, não apenas expressões analíticas para os harmônicos superiores da suscetibilidade (que não abordaremos aqui), como também apresentam um simples argumento de simetria que nos permite entender por que os harmônicos pares só aparecem quando aplica-se um campo estático sobreposto ao campo excitador AC [82]. De fato, se o campo magnético total H é puramente oscilante, $H = h == h_{ac} \cos(\omega t)$, nós temos que a magnetização $M(\omega t) = -M(\omega t + \pi)$ já que a

³A escolha de uma dependência específica da corrente crítica com o campo é evitada ao se trabalhar dentro de limites onde o modelo de Bean pode ser aplicado ao menos aproximadamente.

corrente crítica J_c depende apenas do módulo do campo magnético e $|H(\omega t)| = |H(\omega t + \pi)|$. Mas como

$$\text{sen}(n\omega t) = (-1)^n \text{sen}[n(\omega t + \pi)] \quad (3.16)$$

$$\cos(n\omega t) = (-1)^n \cos[n(\omega t + \pi)] \quad (3.17)$$

nós só obtemos uma magnetização com a simetria correta se ela puder ser expandida apenas nos termos com n ímpar.

No entanto, se temos $H = H_{dc} + h_{ac} \cos(\omega t)$, a corrente crítica não será a mesma que obtemos quando

$$H = H_{dc} + h_{ac} \cos(\omega t + \pi), \quad (3.18)$$

já que a corrente crítica depende apenas da magnitude do campo magnético. Assim, o modelo de estado crítico generalizado com $J_c = J_c(H)$, permite o aparecimento dos harmônicos pares nos casos em que $H_{dc} \neq 0$. Restaria, entretanto, justificar porque no caso de supercondutores clássicos os harmônicos pares nunca estão presentes. Ji *et al.* consideram que algumas condições necessárias para a geração dos harmônicos pares poderiam não ser satisfeitas no caso dos supercondutores clássicos. Como exemplo, eles indicam que se J_c for independente do campo magnético e/ou o campo total H não for muito maior que H_{c1} para estes materiais, então não teríamos a presença dos harmônicos pares.

Os harmônicos superiores da suscetibilidade AC não foram, até o presente, tão explorados quanto o harmônico fundamental. Entretanto, eles podem fornecer informações interessantes. O terceiro harmônico, por exemplo, possui um comportamento razoavelmente diferente no caso da resposta magnética da amostra ser dominada pela superfície ou pelo volume. De fato, como demonstrado por van der Beek *et al.* [53], o gráfico polar do terceiro harmônico da suscetibilidade é uma meia cardióide nos segundo e terceiro quadrantes do plano complexo. Já ao analisar o caso de barreiras superficiais, van der Beek *et al.* obtiveram que este mesmo gráfico polar (às vezes chamado também de gráfico de Argand) assume a forma de uma cardióide completa, restrita ao terceiro e quarto quadrantes [53], o que está de acordo com resultados experimentais para monocristais de Bi:2212 (onde a resposta é dominada por barreiras superficiais) [53], e para diferentes amostras de $(K, Ba)BiO_3$ (cuja resposta foi verificada como sendo volumétrica) [46]. Estes resultados de van der Beek *et al.* estão também em acordo com cálculos numéricos para o terceiro harmônico, apresentados anteriormente por Gilchrist

e Dombre [65]. Outra aplicação proposta para os harmônicos superiores refere-se à definição da linha de irreversibilidade e de H_{c1} [119]. A idéia apresentada neste trabalho baseia-se no fato dos harmônicos superiores serem diferentes de zero apenas na região de resposta não linear, associada ao aprisionamento de vórtices. Já a componente imaginária do harmônico fundamental está relacionada com dissipação de energia no sistema, podendo ser não nula tanto no regime de aprisionamento de vórtices (modelo de Bean), quanto no regime de movimentação de vórtices. Assim, se aumentarmos lentamente o campo externo DC a partir de zero, teremos num primeiro momento o estado Meissner e $\chi''_n = 0$, $n \geq 1$. Ao passarmos por H_{c1} , temos penetração de campo na amostra e o surgimento de uma resposta histerética, não-linear, de tal forma que $\chi''_n \neq 0$. Ao passarmos agora pelo campo de irreversibilidade, H_{irr} , teríamos a liberação dos vórtices que passariam a se mover livremente no material. Este seria o regime de *flux flow*, que apresenta resposta linear (e portanto $\chi''_n = 0$ para $n > 1$) mas com dissipação de energia (e assim $\chi''_1 > 0$; trataremos deste regime mais adiante). Desta forma, poderia-se identificar a temperatura de *depinning/melting* da rede de vórtices e assim definir uma linha de irreversibilidade como sendo a fronteira acima da qual $\chi''_n = 0$ [119].

3.1.2 Validade do modelo de Bean

O modelo de Bean é extremamente útil por sua simplicidade e por apresentar resultados em boa concordância com os dados experimentais em muitos casos. Entretanto, como vimos no caso do cálculo dos harmônicos superiores da suscetibilidade, o modelo de Bean tem limitações e deve ser estendido, ou até mesmo substituído por outros formalismos. Assim, para encerrarmos esta seção, é importante olharmos com um pouco mais de atenção os limites de validade do modelo de Bean.

Talvez a hipótese do modelo de Bean que mais chame a atenção seja considerar a densidade da corrente crítica como sendo constante, independente do valor do campo magnético local. Como vimos na discussão dos harmônicos superiores da suscetibilidade, esta aproximação muitas vezes leva a discrepâncias entre as previsões teóricas e os resultados experimentais. Uma extensão natural do modelo de Bean consiste então em suprimir esta limitação e adotar alguma dependência da corrente crítica com o campo magnético local. A hipótese mais utilizada neste caso consiste em assumir uma força de aprisionamento constante, o que leva a uma corrente crítica inversamente proporcional ao campo magnético. Este é o modelo de Kim [86].

Outro ponto importante é a hipótese de que a densidade de corrente só pode ser zero ou J_c . Isso

implica numa descontinuidade na distribuição de correntes na amostra entre as regiões com $J = J_c$ e $J = 0$, o que não é fisicamente razoável. Devemos estar alertas para a existência de uma queda suave da densidade de corrente entre estes dois valores extremos. Esta questão é particularmente importante no caso de amostras finas com campo magnético aplicado perpendicularmente à sua maior superfície. O modelo de Bean assume ainda que toda a magnetização é irreversível e que se deve exclusivamente ao aprisionamento volumétrico dos vórtices. Em situações em que a contribuição de barreiras superficiais ou magnetização reversível são significativas, a aplicação direta do modelo de estado crítico não é apropriada e estas outras contribuições devem ser devidamente levadas em conta [134].

Finalmente, o modelo de Bean assume que a densidade de corrente crítica é independente do tempo. Em outras palavras, tacitamente assume-se que processos de relaxação magnética não são significativos, ao menos na escala de tempo da medida (que no caso da suscetibilidade AC seria o inverso da frequência do campo excitador). Esta hipótese funciona bastante bem para supercondutores clássicos e supercondutores de alta temperatura crítica estudados a baixas temperaturas, mas de forma alguma é válida em geral. Ainda que esta limitação não tenha sido amplamente explorada anteriormente, o trabalho que desenvolvemos e que apresentaremos mais adiante mostra claramente a importância de inserir a relaxação magnética dentro do formalismo do modelo de estado crítico de Bean em certos casos.

3.2 Suscetibilidade AC no regime de *flux flow*

Vimos na seção anterior que a suscetibilidade magnética de sistemas com forte aprisionamento de vórtices pode ser obtida utilizando o modelo de estado crítico de Bean. Entretanto, um supercondutor ideal, sem centros de aprisionamento de vórtices, não teria como sustentar perfis de campo no seu interior e assim $J_c = 0$ e a própria idéia de estado crítico não faz mais sentido. Mesmo considerando supercondutores reais, há situações em que a resposta magnética do supercondutor não é dominada pelo aprisionamento de vórtices. Isto é observado na vizinhança da transição supercondutora, ou quando aplicamos uma corrente de transporte suficientemente alta. Nestas situações a movimentação de vórtices (termicamente ativada ou não) é intensa e domina o comportamento do supercondutor. No caso de se aplicar uma corrente de transporte maior que a corrente crítica dinâmica, J_{cd} , por exemplo, se assumimos que [87] $E = \rho_{ff} (J - J_{cd})$, obtemos que a taxa de dissipação de energia por

unidade de volume seria basicamente

$$JE = \frac{E^2}{\rho_{ff}} + J_{cd}E \quad (3.19)$$

onde ρ_{ff} é a resistividade de flux flow. O primeiro termo à direita seria devido à movimentação de vórtices (perdas por flux flow) e o segundo estaria relacionado a perdas histeréticas. Assim, temos uma dominância do segundo termo frente ao primeiro apenas quando $E \ll \rho_{ff}J_{cd}$. No caso de uma medida V-I, isto significa que as perdas histeréticas só são dominantes para densidades de corrente próximas a J_{cd} , quando o campo elétrico gerado pela movimentação de vórtices é pequeno.

Para modelarmos a resposta magnética da amostra no caso de *flux flow*, ignoraremos a existência de centros de aprisionamento no material e o trataremos como um supercondutor do tipo II ideal. Em muitos aspectos, o comportamento de tal supercondutor é semelhante ao de um metal normal. Entretanto, tanto a resistividade ρ_{ff} quanto o campo magnético de equilíbrio H_{eq} são funções da indução magnética:

$$\vec{E} = \rho_{ff}(B)\vec{J} \quad (3.20)$$

$$\vec{H} = H_{eq}(B)\hat{B} \quad (3.21)$$

sendo \hat{B} um vetor unitário na direção de \vec{B} . Esta dependência com a indução magnética de ρ_{ff} e H_{eq} faz com que as equações eletrodinâmicas do problema sejam não-lineares e, assim, não se consegue obter soluções analíticas para amplitudes arbitrárias. Entretanto, para pequenas amplitudes do campo excitador, é possível linearizar as equações e obter soluções analíticas.

Considerando então esta aproximação linear e utilizando as equações de Maxwell, obtêm-se as seguintes equações de difusão para a densidade de fluxo magnético e a densidade de corrente na amostra:

$$\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = D_{ff} \nabla^2 \vec{B}, \quad (3.22)$$

$$\frac{\partial \vec{J}}{\partial t} = D_{ff} \nabla^2 \vec{J} \quad (3.23)$$

onde D_{ff} é a difusibilidade magnética de flux flow,

$$D_{ff} = \frac{\rho_{ff}c^2}{4\pi\mu} \quad (3.24)$$

e $\mu = [dB_{eq}(H)/dH]_{H=H_{dc}}$ é a permeabilidade magnética do estado misto. Considerando um campo excitador $H_a = H_{dc} + h_0 \cos(\omega t) = H_{dc} + \text{Re}(h_0 e^{-i\omega t})$, aplicado paralelamente ao eixo de um

supercondutor cilíndrico de raio d , temos que a indução magnética na amostra teria a forma

$$B(r, t) = \mu H_{dc} + \text{Re}(b_{ac}(r, t)e^{-i\omega t}), \quad (3.25)$$

onde r é a coordenada radial. Para satisfazer a eq. 3.22, devemos ter

$$-i\omega \vec{b}_{ac} = D_{ff} \nabla^2 \vec{b}_{ac}, \quad (3.26)$$

cujas soluções são [44]:

$$b_{ac} = \frac{\mu h_0 J_0(kr)}{J_0(kd)}, \quad (3.27)$$

onde J_0 é a função de Bessel de ordem zero e $k = (1 + i)/\delta_{ff}$, sendo

$$\delta_{ff} = \left(\frac{2D_{ff}}{\omega} \right)^{1/2} = \left(\frac{\rho_{ff} c^2}{2\pi \mu \omega} \right)^{1/2} \quad (3.28)$$

a profundidade de pele de flux flow. Fazendo agora a média espacial da indução magnética, eq. 3.25, obtêm-se

$$\begin{aligned} \bar{B}(t) &= \mu H_{dc} + \text{Re}(\bar{b}_{ac}(t)e^{-i\omega t}), \\ b_{ac} &= \tilde{\mu} h_0 \end{aligned} \quad (3.29)$$

e a permeabilidade complexa

$$\tilde{\mu} = \mu' + i\mu'' = 1 + \chi = \frac{2\mu J_1(kd)}{kd J_0(kd)}. \quad (3.30)$$

A suscetibilidade magnética associada à movimentação de vórtices (flux flow) é, ao contrário do resultado obtido pelo modelo de Bean para a situação de vórtices aprisionados, fortemente dependente da frequência do campo excitador (via profundidade de pele). De fato, podemos verificar a suscetibilidade AC é uma função apenas de $kd \propto d/\delta_{ff}$.

3.3 Suscetibilidade AC associada à barreira superficial

Vimos na seção anterior que, na ausência de centros de aprisionamento, a suscetibilidade magnética de um supercondutor pode ser dominada pela movimentação de vórtices dentro da amostra. Entretanto, há um outro possível mecanismo importante nesta situação: a presença de barreiras superficiais.

A existência de uma barreira de energia superficial que se opõe à entrada e saída de vórtices da amostra foi proposta inicialmente por Bean e Livingston [14]. Eles consideram a interação de um vórtice isolado com o campo local próximo à superfície e mostram que esta barreira superficial deve-se à competição entre a pressão magnética que empurra o vórtice para o interior da amostra e a atração que este sente pela sua imagem refletida na superfície (que nada mais é que uma forma de visualizar as condições de contorno na superfície). Após este trabalho inicial, muitos outros estudos surgiram discutindo outras formas de barreiras superficiais. De acordo com Brandt, Ref. [20], pode-se identificar atualmente pelo menos sete diferentes “tipos” de barreiras superficiais, envolvendo diversos fatores tais como fatores geométricos, inhomogeneidades do material próximo à superfície, barreira de Bean-Livingston, etc. Para a discussão que queremos desenvolver aqui, entretanto, não é necessário entrar em tais detalhes. Consideraremos apenas a existência de uma barreira superficial, de alguma espécie, que deve ser transposta pelos vórtices para que haja entrada ou saída de fluxo magnético da amostra.

Se não houvesse qualquer barreira superficial, o campo local no interior da amostra, que seria o campo de equilíbrio termodinâmico H_{eq} , seria igual ao campo aplicado na superfície da mesma. Sempre que o campo externo excede H_{eq} tem-se penetração de campo na amostra de tal forma que H_{eq} volte a se igualar ao campo externo. Da mesma forma, quando o campo externo é menor que H_{eq} temos a saída de fluxo da amostra de forma a manter ambos os campos iguais. Mas com a presença da barreira superficial, um pequeno aumento (redução) no campo aplicado não se reflete num aumento (redução) automático do campo no interior da amostra. De fato, apenas quando o campo externo atinge um valor suficientemente alto para que os vórtices consigam vencer a barreira superficial é que temos a penetração de campo na amostra. Assim, surge uma descontinuidade do campo magnético local na superfície da amostra: no interior da amostra temos o campo local H_{eq} , enquanto no exterior teríamos um campo

$$H_{en} = H_{eq} + \Delta H_{en} \quad (3.31)$$

durante a entrada de campo na amostra. A descontinuidade ΔH_{en} depende da altura da barreira superficial. A situação para a saída de campo é análoga e temos então

$$H_{ex} = H_{eq} - \Delta H_{ex} \quad (3.32)$$

Para esclarecer este ponto, na figura 3.2 apresentamos o perfil de campo para uma amostra com

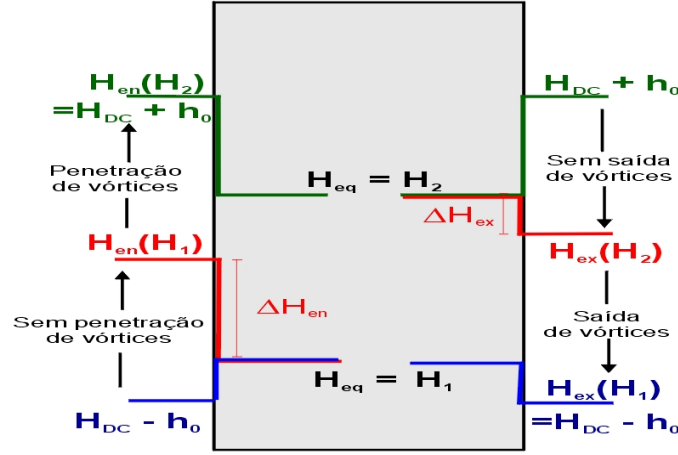


Figura 3.2: Representação esquemática do perfil de campo devido apenas a presença da barreira superficial, conforme o campo externo oscila entre seu valor mínimo $H_{dc} - h_0$ e máximo $H_{dc} + h_0$ (apresentado no lado esquerdo), e de volta ao valor mínimo (lado direito).

barreira superficial mas aprisionamento volumétrico nulo, considerando um campo externo $H_a = H_{dc} + h_0 \cos(\omega t)$. Suponhamos que o ciclo tenha início no seu mínimo $H_a = H_{dc} - h_0$.

Devido à barreira superficial, não ocorre penetração de fluxo até que o campo externo atinja H_{en} , quando então os vórtices conseguem ultrapassar a barreira superficial. Conforme o campo externo aumenta até atingir seu valor máximo $H_{dc} + h_0$, temos a penetração de vórtices de tal forma que a descontinuidade na superfície permaneça igual ao campo externo⁴. Quando o campo externo começa agora a diminuir, H_{eq} permanece inalterado (não temos entrada nem saída de fluxo da amostra) até que o campo externo seja menor que H_{ex} . Deste ponto em diante passamos a ter saída de campo da amostra de forma que a descontinuidade na superfície permaneça constante até que o campo externo atinja seu valor mínimo $H_{dc} - h_0$, quando o ciclo recomeça. Observe que quando $H_{ex} < H_a < H_{en}$ o sistema permanece numa situação metaestável onde não há nem entrada nem saída líquida de fluxo magnético da amostra.

O cálculo da suscetibilidade complexo, considerando a dependência da barreira superficial com o campo magnético local, é bastante complexa e exige soluções numéricas [42]. Linearizando o problema, entretanto, é possível obter as principais propriedades pelo menos qualitativamente e é

⁴Assumindo que a própria barreira superficial não dependa do campo magnético local.

este procedimento que apresentaremos a seguir. Vamos então considerar que a amplitude do campo excitador é pequena frente ao campo estático, $h_0 \ll H_{dc}$ de tal forma que a resposta do supercondutor possa ser escrita simplesmente como

$$B = B_{eq}(H_{dc}) + b_{ac}, \quad (3.33)$$

onde $b_{ac} \ll B_{eq}(H_{dc})$. Também vamos considerar que nesta situação vale a aproximação

$$\frac{dH_{en}}{dB} = \frac{dH_{ex}}{dB} = \frac{dH_{eq}}{dB} \quad (3.34)$$

Em outras palavras, estamos considerando que tanto ΔH_{en} quanto ΔH_{ex} são constantes, assim como o campo característico $H^* = (\Delta H_{en} + \Delta H_{ex})/2 = (H_{en} - H_{ex})/2$. O laço de histerese então é dado simplesmente pelas relações [44]:

$$\begin{aligned} b_{ac} &= \mu(h_0 - H^*), & 0 \leq \omega t \leq \theta, \\ &= \mu(h_0 \cos(\omega t) + H^*), & \theta \leq \omega t \leq \pi, \\ &= \mu(-h_0 + H^*), & \pi \leq \omega t \leq \pi + \theta, \\ &= \mu(h_0 \cos(\omega t) - H^*), & \pi + \theta \leq \omega t \leq 2\pi, \end{aligned} \quad (3.35)$$

onde introduziu-se uma fase auxiliar θ para facilitar os cálculos e que é dada por

$$\begin{aligned} \cos \theta &= 1 - 2u, \\ u &= \frac{H^*}{h_0} \leq 1 \end{aligned} \quad (3.36)$$

Com estes resultados em mãos, pode-se utilizar as eqs. 3.3 para calcular a suscetibilidade complexa, obtendo-se [44]:

$$\chi' = (\mu - 1) - \mu \frac{(\theta - \sin(\theta) \cos(\theta))}{\pi}, \quad (3.37)$$

$$\chi'' = \frac{\mu (\sin(\theta))^2}{\pi} = \frac{4u\mu}{\pi} (1 - u). \quad (3.38)$$

É interessante observar que também neste caso a suscetibilidade AC depende apenas da variável $u = H^*/h_0$, que tem exatamente a mesma forma da razão $x = h_0/h^*$, ainda que o significado do campo característico h^* seja completamente diferente em ambos os casos.

3.4 Dissipação de energia em supercondutores

Entender como ocorre a dissipação de energia em supercondutores expostos a campos alternados é de vital importância para aqueles que trabalham em supercondutividade aplicada. Essas perdas de energia são pontos chaves no projeto de um vasto número de aplicações, tais como linhas de transmissão e magnetos para gerar altos campos magnéticos pulsados.

De uma forma geral, a dissipação de energia ocorre (tanto para um metal normal quanto para um supercondutor) quando o material é submetido a um campo magnético alternado $\vec{H}_a(t) = H_{ac} + h_0 \cos(\omega t)$, gerando assim uma indução magnética \vec{B} (e consequentemente uma magnetização \vec{M}) na amostra, o que leva ao aparecimento de um campo elétrico \vec{E} de acordo com a lei de Faraday. Juntamente com o campo elétrico surge uma densidade de corrente \vec{J} , de tal forma que a energia dissipada por unidade de volume é simplesmente $\vec{J} \cdot \vec{E}$. Conforme $H_a(t)$ varia, a indução magnética média no volume da amostra \vec{B} a acompanha com uma certa defasagem. A trajetória de \vec{M} em função de H_a traça um laço de histerese de área A_H que, de acordo com o teorema de Poynting, é proporcional à energia dissipada por ciclo:

$$W = \frac{A_H}{4\pi} = \frac{1}{4\pi} \oint H dM \quad (3.39)$$

Em outras palavras, a dissipação de energia no material é grande quando a área do laço de histerese é grande. Para que isso ocorra, devemos ter duas condições simultaneamente satisfeitas:

1. Há uma grande entrada e saída de fluxo magnético da amostra em cada ciclo
2. \vec{B} está significativamente fora de equilíbrio em relação a H_a durante o ciclo.

Assim, devemos ter uma dissipação de energia máxima quando a corrente de blindagem não é nem muito intensa, nem muito fraca. Isso porque no caso de pequenas correntes de blindagem, temos que a indução magnética na amostra segue de perto o campo aplicado $\vec{B} = H_a$, ou seja, $M \approx 0$. Neste caso a dissipação é pequena mesmo tendo muito fluxo magnético entrando e saindo da amostra em cada ciclo. Já para o caso de correntes de blindagem muito intensas, $\vec{B} \approx 0$ e $M \approx H_a$. Assim, \vec{B} está sempre longe do equilíbrio com H_a mas temos por outro lado uma penetração mínima de fluxo na amostra (o laço de histerese é estreito) e novamente a dissipação é pequena.

Como já havíamos comentado de passagem anteriormente, há uma ligação direta entre a componente imaginária da suscetibilidade complexa e a dissipação de energia. De fato, reescrevendo a

eq. 3.39 como

$$\oint H dM = \int_0^T (H_{dc} + h_0 \cos(\omega t)) \frac{dM(t)}{dt} dt, \quad (3.40)$$

expandindo a magnetização em termos dos harmônicos da suscetibilidade como feito na eq. 3.3 e fazendo a integração, encontramos que o único termo que não se anula seria o termo com $n = 1$, $\cos^2(\omega t)$ e assim obtemos ao final que

$$A_H = \pi h_0^2 \chi'' \quad (3.41)$$

e, portanto,

$$W = \frac{h_0^2 \chi''}{4} \quad (3.42)$$

Esta é a prova formal da interpretação que já havíamos apresentado anteriormente, em que associávamos a componente imaginária da suscetibilidade complexa com a presença de processos dissipativos. O raciocínio desenvolvido acima é bastante geral e não utilizou nenhuma hipótese quanto a origem do processo dissipativo. De fato, os resultados obtidos são gerais a ponto de poderem ser aplicados não apenas a supercondutores, como também para metais normais.

Uma vez que já calculamos a suscetibilidade complexa decorrente de diferentes mecanismos, tais como aprisionamento de vórtices ou presença de barreiras superficiais, a determinação da energia dissipada por ciclo, via eq. 3.42, é imediata. Como exemplo, consideraremos o caso de perdas histeréticas, associadas ao aprisionamento volumétrico dos vórtices. Assim, substituindo diretamente os resultados obtidos para a parte imaginária da suscetibilidade complexa para uma amostra cilíndrica com o campo magnético aplicado paralelamente ao seu eixo, eq. 3.10, na eq. 3.42, obtemos

$$W = \frac{h_0^2}{3\pi} \left(x - \frac{x^2}{2} \right). \quad (3.43)$$

Podemos ver então que a dissipação neste caso será máxima quando $x = h_0/h^* = 1$, ou seja, quando a amplitude do campo excitador iguala-se ao campo característico $h^* = (4\pi/c)dJ_c$ e a perturbação AC atinge o centro da amostra. Conhecendo então o raio d da amostra e determinando h^* através de medidas da suscetibilidade AC em função de h_0 , podemos determinar a densidade de corrente crítica da amostra. Este seria um método simples, rápido e sem a necessidade de colocar contatos na amostra, de se estimar J_c .

Mecanismo	Aprisionamento de vórtices	Movimentação de vórtices	Barreira superficial
Razão característica	$h_0/h^* = L_p/d$	d/δ_{ff}	h^*/h_0
Máximo em χ''	$h_0 = h^*; L_p = d$	$\delta_{ff} = 0.56d$	$h_0 = 2h^*$
χ' e χ'' dependem de:			
H_{dc}	Sim	Sim	Sim
h_0	Sim	Não	Sim
ω	Não	Sim	Não
$\chi_3 \neq 0$	Sim	Não	Sim
Forma de $\chi_3'' \times \chi_3'$	Meia cardióide	-	Cardióide

Tabela 3.1: Quadro resumo das principais características dos mecanismos de dissipação de energia em supercondutores

3.4.1 Comparando os diferentes mecanismos de dissipação em supercondutores

Vimos até aqui que a suscetibilidade magnética de materiais supercondutores pode ser determinada por diferentes mecanismos e que, em geral, temos dissipação de energia envolvida nestes processos. Uma primeira questão que surge então seria, uma vez que tenhamos feito uma medida de suscetibilidade AC, como poderíamos saber qual destes processos é predominante nesta medida. Para tanto, devemos olhar com mais atenção às expressões obtidas para a suscetibilidade AC dentro de cada um dos mecanismos estudados e determinar as características básicas de cada um. Como um exemplo, verificamos que no caso de aprisionamento volumétrico de vórtices e/ou barreira superficial não devemos ter dependência da suscetibilidade com a frequência. Já para o caso de movimentação de vórtices, espera-se que a suscetibilidade dependa da frequência. Na tabela 3.1 apresentamos algumas das principais características destes modelos que podem ser usadas para testar quais mecanismos estão presentes em cada caso particular. Além destas propriedades do harmônico fundamental, os harmônicos superiores da suscetibilidade fornecem informações que permitem uma distinção entre estes regimes de uma forma bastante clara, como apresentado anteriormente. Para completar este quadro, apresentamos também na tabela 3.1 as propriedades do terceiro harmônico da suscetibilidade para cada mecanismo.

Um último alerta deve ser feito para encerrar esta seção. O leitor deve estar precavido para o

fato de, apesar dos diferentes mecanismos terem sido estudados separadamente, em uma medida real a resposta magnética da amostra pode ser determinada por mais de um destes mecanismos atuando simultaneamente. Pior que isso, estes processos não são simplesmente aditivos, havendo uma forte interação entre estes três mecanismos. Desta forma, é muito difícil se calcular a resposta global da amostra quando mais de um destes mecanismos possuem importâncias comparáveis entre si. Um caso onde ainda é possível se conseguir algum resultado analítico é quando se pode ignorar a contribuição da movimentação de vórtices. A princípio então, é possível tratar o aprisionamento volumétrico de vórtices e o aprisionamento superficial (barreira superficial) simultaneamente [42] e determinar qual a contribuição de cada um deles para a dissipação de energia total, por exemplo.

3.5 Sistemas granulares

Todos os resultados apresentados até agora consideram o material supercondutor como sendo homogêneo. No caso dos supercondutores de alta temperatura crítica, entretanto, esta hipótese muitas vezes não se justifica. As amostras policristalinas destes materiais são formadas por pequenos grãos cristalinos inseridos em uma matriz de material não-estequiométrico sendo, portanto, bastante heterogêneas. A granularidade do material tem uma forte influência nas propriedades eletromagnéticas da amostra e deve ser levada em conta nos modelos utilizados. Mesmo no caso de amostras monocristalinas, a ocorrência de maclas nestes cristais faz com que estas amostras também sejam tratadas, por alguns autores, como “granulares” [54].

Para analisar medidas de suscetibilidade AC para amostras policristalinas, devemos primeiramente separar a contribuição dos grãos supercondutores da parte referente a matriz, como proposto inicialmente por Clem [43]. Considerando que a matriz intergrãos é constituída de um material normal ou fracamente supercondutor e por vazios, podemos dizer que a suscetibilidade complexa pode ser escrita como

$$\chi = f_g \chi_g + (1 - f_g) \chi_m, \quad (3.44)$$

onde f_g é a fração volumétrica efetiva dos grãos e $\chi_{g,m}$ é a suscetibilidade dos grãos/matriz⁵. A fração volumétrica efetiva dos grãos que introduzimos acima não é simplesmente a razão entre a soma dos volumes de todos grãos dividida pelo volume total da amostra. De fato, no cálculo de f_g

⁵Utilizaremos aqui os sub-escritos g para indicar grandezas referentes aos grãos e m para aquelas referentes à matriz.

deve-se descontar o volume da região dos grãos onde houve penetração de campo [38, 67]. Assim, como f_g depende da profundidade de penetração de London e esta é uma função da temperatura, a fração volumétrica efetiva dos grãos é também dependente da temperatura.

Como não temos penetração de campo nos grãos para campos aplicados $H_a < H_{c1g}$, a suscetibilidade dos grãos no limite de baixos campos seria $\chi_g = -1$ e a suscetibilidade total representaria apenas a resposta referente à matriz:

$$\chi = -f_g + (1 - f_g)\chi_m. \quad (3.45)$$

Já na região de altos campos podemos desprezar a suscetibilidade da matriz frente a suscetibilidade dos grãos e assim a eq. 3.44 reduz para

$$\chi = f_g\chi_g \quad (3.46)$$

Resta a questão de como calcular χ_g e χ_m . Uma amostra policristalina pode ser modelada como um conjunto de grãos supercondutores com uma densidade de corrente crítica J_{cg} , ligados por um conjunto de junções Josephson caracterizadas por uma densidade de corrente crítica J_{cm} . O problema, entretanto, é bastante complexo e é normalmente resolvido numericamente.

Experimentalmente, o que se observa nas medidas de suscetibilidade AC em amostras policristalinas é a ocorrência de uma “dupla transição”, como apresentado na figura 3.3. Conforme a temperatura é reduzida, a componente real χ' apresenta uma primeira transição em $T = T_{cg}$, simultaneamente ao aparecimento de um pico na componente imaginária χ'' , ambas associadas à transição supercondutora dos grãos. Para temperaturas mais baixas χ' permanece constante até que em $T = T_{cm}$ temos uma segunda transição, novamente acompanhada de um pico em χ'' , mas desta vez associada à resposta da matriz intergrãos. Para $T_{cm} < T < T_{cg}$ os grãos estariam desacoplados e a suscetibilidade medida seria a soma da suscetibilidade dos grãos individuais ($\chi_m = 0$). Se a profundidade de penetração λ for pequena comparada ao raio médio dos grãos, o nível do plateau em χ' então forneceria o volume dos grãos [66], $f_g \approx |\chi'|$. Como isso dificilmente ocorre dada a proximidade com T_{cg} , para obter uma estimativa mais confiável de f_g devemos aplicar um campo magnético intenso o suficiente para suprimir o acoplamento dos grãos e considerar o valor de χ' a temperaturas muito abaixo da temperatura de transição. Ainda assim, se os grãos da amostra forem pequenos, é necessário incluir λ na estimativa de f_g . Podemos ver que a discussão do volume dos grãos obtidos de medidas de suscetibilidade AC em amostras policristalinas não é tão trivial, e uma série de cuidados deve ser tomada para se obter resultados corretos [73, 66].

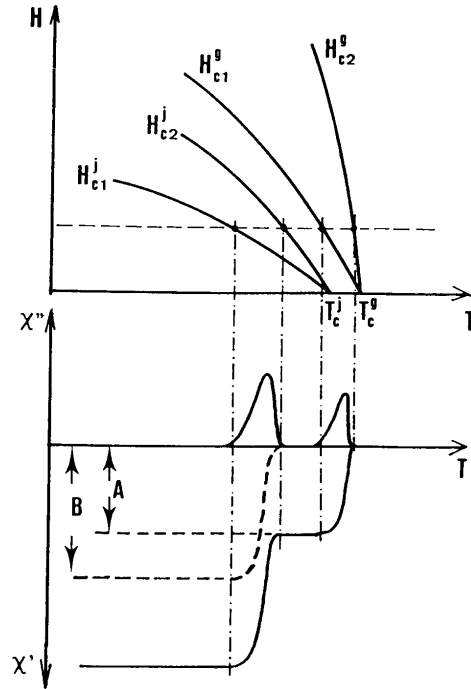


Figura 3.3: Diagrama de fase esquemático para um supercondutor do tipo II granular e sua implicação na suscetibilidade magnética AC deste material (Extraído da Ref. [96]). O índice g refere-se aos grãos e o índice j aos material intergrãos.

Como apontamos anteriormente, o modelo de estado crítico foi desenvolvido considerando um material homogêneo. Entretanto, esta limitação é “contornada” no caso de materiais granulares aplicando-se separadamente o modelo de estado crítico para os grãos e para a matriz. Este foi o método utilizado, por exemplo, por Müller [102]. Considerando os grãos como sendo cilindros alinhados ao campo aplicado com raios variáveis R_g (onde estes raios obedecem a alguma distribuição de tamanhos a ser determinada) e assumindo diferentes densidades de força de aprisionamento de vórtices (independentes do campo local) para a matriz e para os grãos, ele conseguiu obter resultados numéricos bastante próximos dos dados experimentais. Procedimento semelhante, mas focando agora em testar diferentes dependências com o campo local para $J_c(H)$ foi apresentado por Chen *et al.* [38]. Os autores propuseram ainda a presença de clusters de grãos fortemente acoplados em certas amostras, baseados na discrepância observada entre os valores encontrados para f_g a partir da análise exposta acima e o volume real dos grãos. Também levanta-se a questão básica se pode-se aplicar

o modelo de estado crítico para a matriz, mesmo considerando que ela não é, necessariamente, um supercondutor do tipo II (os autores consideram que tal procedimento é válido).

Capítulo 4

Suscetibilidade AC para amostras finitas

O interesse por uma melhor compreensão da suscetibilidade magnética para amostras supercondutoras finitas, em particular para amostras finas com o campo magnético aplicado perpendicularmente à sua maior dimensão, excede em muito a simples curiosidade acadêmica. Filmes finos supercondutores têm um considerável potencial de aplicação para certos dispositivos eletrônicos especiais, sendo de extrema importância para o desenvolvimento destes dispositivos um detalhado entendimento de como um campo magnético alternado penetra nestes filmes finos e, especialmente, qual a intensidade e mecanismos dissipativos envolvidos neste caso. Além disso, as amostras disponíveis nos laboratórios não são cilindros infinitos. Muitas vezes uma descrição mais realista da geometria da amostra é necessária para a correta interpretação dos resultados experimentais. Isto é particularmente verdade para amostras monocristalinas de cerâmicas supercondutoras, que são pequenas lâminas em geral medidas com o campo aplicado perpendicularmente a sua maior superfície (para maximizar o sinal a ser medido). Seja então pelas necessidades da física básica experimental, seja pela aplicação tecnológica, modelos que tratem a geometria do problema da forma mais próxima da realidade possível são de enorme interesse.

Neste capítulo, revisaremos os principais resultados obtidos para geometrias finitas. Nos casos mais simples onde o problema é, essencialmente, unidimensional (que seria o caso de faixas¹, discos e

¹Ainda que uma faixa fina infinita não seja, evidentemente, uma amostra finita, esta geometria é essencialmente análoga à do disco. Por esta razão colocamos a discussão desta geometria junto com a relativa a discos finos, estes sim

anéis finos supercondutores), pode-se obter expressões analíticas para a suscetibilidade aplicando-se os conceitos básicos do modelo de Bean. Entretanto, para geometrias transversas (campo magnético aplicado perpendicularmente à maior dimensão da amostra), a distribuição de correntes e campos no interior da amostra difere significativamente do modelo de Bean original, para geometrias longitudinais [107, 100, 138, 27]. Apenas para ilustrar este ponto, pode-se verificar que numa amostra fina submetida a um campo magnético transversal, as correntes associadas aos vórtices devem-se basicamente à *curvatura* das linhas de campo magnético e não ao *gradiente de fluxo magnético* na amostra (como ocorre para geometrias longitudinais)² [27]. Já para geometrias mais complexas, como quadrados ou amostras com espessura não desprezível, faz-se necessário lançar mão de soluções numéricas.

4.1 Geometrias “unidimensionais”: discos, anéis e faixas

O problema de como aplicar o modelo de estado crítico e, a partir daí, obter a suscetibilidade AC para discos e faixas finas supercondutoras com um campo magnético periódico aplicado perpendicularmente à sua superfície tem despertado muito interesse ao longo do tempo. Alguns trabalhos pioneiros nesta área [107, 63, 48] aplicaram métodos numéricos para determinar a distribuição de campo e corrente em discos finos, assumindo uma corrente crítica constante (modelo de Bean) ou usando o modelo de Anderson-Kim [4]. No caso de faixas supercondutoras, normalmente trata-se também do caso em que se aplica uma corrente de transporte, juntamente ou não à presença de campos magnéticos transversais [107]. Mais recentemente, Mikheenko e Kuzovlev [100] e Zhu *et al.* [138] conseguiram calcular a distribuição de corrente em discos finos supercondutores aplicando o modelo de estado crítico, trabalhos estes posteriormente estendidos por Clem e Sanchez [45]. Seguindo por uma linha diferente, Brandt apresentou um detalhado estudo numérico (além de trabalhos analíticos) para esta geometria [17, 19]. Esta abordagem de Brandt se mostrou muito importante por permitir o estudo de outras geometrias ainda mais complexas, onde os resultados analíticos não são comuns.

sendo amostras realmente finitas.

²Importante não confundir aqui *linhas de campo* com *linhas de fluxo*. De fato, em filmes finos as linhas de fluxo (os fluxóides) são essencialmente retos, ainda que as linhas de campo, devido ao grande fator de desmagnetização, são fortemente curvadas. Não há qualquer contradição aqui, já que a relação entre as formas das linhas de campo e de fluxo magnético é não-local e, em dimensões menores que o comprimento de penetração λ elas não precisam coincidir [27].

O caso de faixas supercondutoras também foi extensivamente estudado, sendo que destacamos os trabalhos de Brandt *et al.* [27, 28], Brandt [18, 19], Stoppard e Gugan [122] e Zeldov *et al.* [136]. No entanto, para não nos estendermos demasiadamente neste ponto, apresentaremos a seguir apenas o caso de discos finos em maior detalhe, apenas indicando os resultados para faixas e anéis³. Tais modelos foram testados experimentalmente por Herzog *et al.* [75].

Consideremos um disco supercondutor de raio R e espessura $d \ll R$, submetido a um campo magnético externo $\vec{H}_a = H_a \hat{z}$ perpendicular à maior superfície da amostra. Quando o campo aplicado excede $(d/R)^{1/2} H_{c1}$, o campo local na borda do disco excede H_{c1} e temos penetração de vórtices na amostra. Na presença de centros de aprisionamento, estes vórtices penetrarão na amostra apenas o suficiente para reduzir a densidade de corrente local a J_c . Utilizando o modelo de Bean⁴, desconsiderando a influência de barreiras superficiais e assumindo $H_{c1} = 0$, Mikheenko e Kuzovlev [100] mostraram que a distribuição de corrente na amostra pode ser expressa como

$$J_\phi(\rho) = \frac{-2J_c}{\pi} \tan^{-1} \left[\frac{\rho (R^2 - a^2)^{1/2}}{R (a^2 - \rho^2)^{1/2}} \right], \quad \rho \leq a \quad (4.1)$$

$$= -J_c, \quad a \leq \rho \leq R \quad (4.2)$$

onde utilizaram-se coordenadas cilíndricas $\rho = (x^2 + y^2)^{1/2}$, $\phi = \tan^{-1}(y/x)$ e z . A densidade de corrente local tem, portanto, apenas uma componente azimutal, igual a J_c na região anelar onde ocorre a penetração de vórtices, cujo raio interno a é dado por

$$a = \frac{R}{\cosh(H_a/h^*)}, \quad (4.3)$$

$$h^* = \frac{J_c d}{2}.$$

Veja que J decai suavemente de $J = J_c$ para $\rho \geq a$, até $J = 0$ para $\rho = 0$ (centro da amostra). Interessante observar que, de acordo com eq. 4.3, a tende apenas assintoticamente a zero e assim o perfil crítico de campo, a rigor, nunca atinge o centro da amostra⁵. Ainda assim, o campo carac-

³Ao leitor interessado, sugerimos a consulta das referências indicadas para uma discussão mais detalhada destes temas.

⁴O modelo de Bean é adotado no sentido de J_c ser independente do campo magnético local e de que temos depinning dos vórtices quando a densidade de corrente local supera o valor crítico J_c . Entretanto, certas mudanças são necessárias para tratar esta geometria, tal como considerar que J pode assumir valores diferentes de J_c ou 0, evitando-se assim discontinuidades na distribuição de corrente na amostra.

⁵Na prática o formalismo 2D apresentado não se aplica mais e $B(\rho = 0) \neq 0$ quando o valor de a se aproxima da

terístico h^* desempenha papel análogo ao campo de penetração completa apresentado na aplicação do modelo de Bean para cilindros infinitos. Este ponto ficará mais claro mais adiante.

Para o cálculo da suscetibilidade AC, precisamos determinar a variação da distribuição de correntes na amostra conforme variamos o campo externo entre seus valores extremos h_0 e $-h_0$. Como explicado por Zhu *et al.* [138], devemos ter na região externa do disco, neste caso, um novo anel de raio interno b onde $J_\phi = +J_c$, associada à saída de vórtices da amostra conforme o campo externo é reduzido. A distribuição de correntes total na amostra pode então ser obtida pela sobreposição da configuração inicial de correntes com a contribuição reversa provocada pela redução do campo:

$$J_\phi(\rho) = \frac{-2J_c}{\pi} \tan^{-1} \left[\frac{\rho (R^2 - a^2)^{1/2}}{R (a^2 - \rho^2)^{1/2}} \right] + \frac{4J_c}{\pi} \tan^{-1} \left[\frac{\rho (R^2 - b^2)^{1/2}}{R (b^2 - \rho^2)^{1/2}} \right], \quad \rho \leq a \quad (4.4)$$

$$= -J_c + \frac{4J_c}{\pi} \tan^{-1} \left[\frac{\rho (R^2 - b^2)^{1/2}}{R (b^2 - \rho^2)^{1/2}} \right], \quad a \leq \rho \leq b \quad (4.5)$$

$$= J_c, \quad b \leq \rho \leq R \quad (4.6)$$

onde $b = R / \cosh[(h_0 - H_a)/2h^*]$. Uma vez tendo a distribuição de corrente na amostra, o cálculo da magnetização é imediato, uma vez que

$$M = \frac{1}{R^2} \int_0^R \rho^2 J_\phi(\rho) d\rho. \quad (4.7)$$

Desta forma, o laço de histerese para uma campo AC de amplitude h_0 é dado por [138]:

$$M_\downarrow = -\chi_0 h_0 S(h_0/h^*) + \chi_0 (h_0 - H_a) S[(h_0 - H_a)/2h^*], \quad (4.8)$$

$$M_\uparrow = +\chi_0 h_0 S(h_0/h^*) - \chi_0 (h_0 + H_a) S[(h_0 + H_a)/2h^*] \quad (4.9)$$

onde $\chi_0 = 8R/3\pi d$ é a suscetibilidade externa no caso de blindagem perfeita e a função $S(y)$ é definida como

$$S(y) = \frac{1}{2y} \left[\cos^{-1} \left(\frac{1}{\cosh y} \right) + \frac{\sinh y}{\cosh^2 y} \right]. \quad (4.10)$$

Substituindo as expressões obtidas para a magnetização nas eqs. 3.3 obtêm-se para os harmônicos ímpares da suscetibilidade⁶:

$$\chi'_n = \frac{2\chi_0}{\pi} \int_0^\pi (1 - \cos \theta) S[(x/2)(1 - \cos \theta)] \cos(n\theta) d\theta \quad (4.11)$$

$$\chi''_n = \frac{2\chi_0}{\pi} \int_0^\pi \{-S(x) + (1 - \cos \theta) S[(x/2)(1 - \cos \theta)]\} \sin(n\theta) d\theta \quad (4.12)$$

espessura da amostra, da profundidade de penetração de London λ ou do comprimento de blindagem bidimensional $\Lambda = 2\lambda^2/d$ (o que for maior dos três).

⁶Os harmônicos pares são identicamente nulos

onde introduzimos $x = h_0/h^*$. O harmônico fundamental ($n = 1$) da suscetibilidade assume então os comportamentos limites:

$x \ll 1$:

$$\chi' \approx -\chi_0 \left(1 - \frac{15}{32}x^2\right), \quad (4.13)$$

$$\chi'' \approx \chi_0 \frac{x^2}{\pi}, \quad (4.14)$$

$x \gg 1$:

$$\chi' \approx -\chi_0 \left(1.33x^{-3/2} - 0.634x^{-5/2}\right), \quad (4.15)$$

$$\chi'' \approx \chi_0(x^{-1} - 1.059x^{-2}). \quad (4.16)$$

Utilizando ainda a eq. 4.12, Clem determinou numericamente a posição do pico em χ'' , obtendo $x(\chi''_{\max}) = 1.942$.

Os cálculos desenvolvidos para os casos de faixas e anéis finos é bastante similar ao apresentado acima para discos finos e, por isso, não os reproduziremos aqui. As expressões finais para a suscetibilidade AC, neste caso normalizadas para $4\pi\chi' = -1$, quando $x = 0$, são apresentadas abaixo.

- Faixa [27, 122]:

$$\chi' \approx -\frac{1}{x} \tanh x, \quad (4.17)$$

$$\chi'' \approx -\frac{1}{x} \tanh x + \frac{2}{x} \tanh\left(\frac{x}{2}\right) \quad (4.18)$$

onde $x = h_0/h^*$, $h^* = J_c d/\pi$ (d sendo a espessura da faixa).

- Anel fino[75]:

$x \leq 1$:

$$\chi' \approx -1, \quad (4.19)$$

$$\chi'' \approx 0, \quad (4.20)$$

$x \geq 1$:

$$\chi' \approx -\frac{1}{2} - \frac{1}{\pi} \left[\arcsen(s) + s\sqrt{1-s^2} \right], \quad (4.21)$$

$$\chi'' \approx \frac{1-s^2}{\pi}. \quad (4.22)$$

onde $s = 2/x - 1$, $x = h_0/h^*$, e

$$h^* = J_c d w \frac{\ln(8R/w) - 1/2}{\pi R} \quad (4.23)$$

sendo R o raio médio do anel, w sua largura e d a espessura do mesmo. Novamente vemos que a suscetibilidade depender apenas da razão $x = h_0/h^*$, tal como observado no caso de amostras infinitas na configuração longitudinal e para discos na configuração transversal.

4.1.1 Comportamento universal da suscetibilidade AC

Os resultados obtidos para a suscetibilidade AC em diferentes geometrias nos levam a concluir que a suscetibilidade AC é uma função apenas da razão entre a amplitude do campo excitador e o campo característico h^* , razão esta relacionada com a fração do volume da amostra penetrada pelo campo excitador. Não conhecemos nenhuma prova formal de que esta afirmação seja realmente válida dada uma geometria qualquer. No entanto, mostramos que para geometrias bastante diversas a suscetibilidade AC depende apenas do valor de $x = h_0/h^*$. De fato, considerando todas as diferentes geometrias que estudamos até aqui, parece razoável supor que qualquer amostra possa ser descrita, ao menos aproximadamente, por um destes modelos. E, se para geometrias tão diferentes quanto as já apresentadas, esta dependência exclusiva da suscetibilidade em termos de x está sempre presente, não entenderia como uma geometria semelhante a uma delas possa vir a não seguir tal característica. Num aspecto mais fundamental, parece haver razões muito básicas para que a suscetibilidade seja, no caso de resposta volumétrica, dependente apenas da fração da amostra penetrada pelo campo excitador externo, e isso não deve mudar com a geometria da amostra. Gostaria de ressaltar ainda que isso não significa que medidas de suscetibilidade AC feitas em amostras de diferentes formatos apresentam o mesmo valor se x for o mesmo em ambos os casos. A dependência da suscetibilidade com a razão x é diferente para cada geometria. Mas, *para qualquer geometria*, a dependência da suscetibilidade com parâmetros como temperatura, frequência e amplitude do campo excitador é indireta, dada pela *dependência da razão x em função destes parâmetros*.

A idéia da suscetibilidade AC depender de um único parâmetro, a razão $x = h_0/h^*$, é muito interessante por vários motivos. Em primeiro lugar, a razão x depende essencialmente da forma como o campo excitador penetra na amostra. Entender os detalhes desta penetração e os processos dissipativos associados a esta movimentação de fluxo magnético no interior da amostra é fundamental para aplicações. Assim, medidas de suscetibilidade AC podem ser muito importantes na caracteri-

zação de dispositivos supercondutores submetidos a campos alternados. Outro ponto interessante é a possibilidade de inferir o valor da suscetibilidade para situações onde uma medida direta não é possível. Por exemplo, suponhamos que deseja-se medir a suscetibilidade em função da frequência ω do campo excitador, mas o aparato experimental disponível não permite realizar medidas a altas frequências (ainda que permita grandes variações de um outro parâmetro, digamos a amplitude h_0 do campo excitador). Se conhecermos a dependência de x com ω e h_0 , podemos usar o fato da suscetibilidade depender apenas de x para induzir qual seria a curva $\chi(\omega)$ a partir de uma medida de $\chi(h_0)$.

Para podermos aplicar tal lei de escala com mais confiança para qualquer situação, precisamos antes olhar com mais cuidado para dois pontos ainda não abordados nesta seção de suscetibilidade de amostras finitas: Em primeiro lugar, ainda que tenhamos estudado diversas geometrias, não vimos nenhum caso legitimamente tri- (ou mesmo bi-) dimensional. Devemos estudar o caso de quadrados planos e cilindros de altura finita, por exemplo, para ver se este comportamento universal ainda se verifica nestes casos. Outro ponto fundamental é ter em mente que o que apresentamos até aqui para amostras finitas sempre considerou uma resposta histerética, associada ao estabelecimento de um estado crítico de campo no interior da amostra. Seria interessante se pudéssemos verificar se este comportamento universal observado é uma consequência do modelo de estado crítico ou se trata-se de algo ainda mais fundamental. Este é o tema da próxima seção.

4.2 Geometrias bi- e tridimensionais

Ao considerarmos geometrias mais complexas, tais como quadrados ou amostras espessas (tais como cilindros de altura finita), os métodos utilizados até aqui não funcionam bem e uma abordagem diferente é necessário. Este novo modo de atacar o problema surgiu com os trabalhos de Brandt⁷ que, em uma série de artigos, tratou numericamente diversas geometrias de interesse. Vamos nesta

⁷Outros autores apresentaram soluções numéricas para certas geometrias finitas, veja por exemplo os trabalhos de Frankel e de Forkl *et al.* [62, 63], anteriormente a Brandt. No entanto, o método adotado por Brandt pode ser adaptado facilmente para outras geometrias pouco discutidas (retângulos, faixas espessas, cilindros finitos). Além disso, este método naturalmente trata dos efeitos de movimentação de vórtices na amostra, ponto este de vital importância para ajustar os dados experimentais. Ainda que não totalmente justo com trabalhos anteriores de outros autores, nosso enfoque centrado quase exclusivamente nos cálculos de Brandt deve-se basicamente ao reconhecimento de que este novo tratamento representou um grande avanço nesta área.

seção apresentar um exemplo de como este método pode ser aplicado e de como os resultados assim obtidos podem nos ajudar a entender as questões levantadas ao final da seção anterior.

Como já discutimos na seção passada, amostras finas na forma de retângulos podem ser descritas de forma aproximada por soluções derivadas para discos ou faixas finas [19, 21]. Entretanto, certas propriedades são específicas das geometrias retangulares e não podem, a princípio, ser descritas por estas geometrias unidimensionais. Exemplos destas propriedades específicas seriam o aparecimento de linhas de descontinuidade no perfil de campo no estado crítico de Bean [21, 114] e, na presença de campos magnéticos variáveis, a penetração de linhas de fluxo penetrando primeiramente pelo meio das laterais da amostra (ao invés de começar a penetrar pelos cantos da mesma) [21, 29]. Tais características exclusivas de certas geometrias bidimensionais foram verificadas em imagens obtidas por magneto-óptica [115, 116].

Outras geometrias de interesse são amostras de espessura finita, tais como barras e cilindros. Novamente Brandt determinou com detalhes a distribuição espacial da correntes e do campo magnético no interior tanto de barras com campo aplicado perpendicularmente ao seu comprimento [22] quanto para cilindros de altura finita com campo aplicado axialmente [25]. Uma vez tendo estes resultados em mãos, pode-se calcular a suscetibilidade AC, tal como apresentado para o caso de cilindros finitos na Ref. [26]. Sendo esta a geometria mais utilizada em nosso trabalho(que apresentaremos adiante) e dada a importância que este método de cálculo apresentado por Brandt possui (em nossa opinião), apresentaremos a seguir uma discussão mais detalhada apenas deste caso em particular.

Vamos considerar [25] o caso de um cilindro de raio a e comprimento $2b$ colocado em um campo magnético aplicado paralelamente ao eixo do cilindro, na direção \hat{y} . Ao invés de modelar a resposta supercondutora aplicando diretamente o modelo de estado crítico de Bean, Brandt propôs uma abordagem eletrodinâmica, de primeiros princípios, para o problema. Neste caso, o material é caracterizado basicamente pela relação $B_a(t) = \mu H_a(t)$, que implica em considerar o campo crítico inferior $H_{c1} = 0$, e por uma dada lei de voltagem-corrente $\vec{E} = E(J) \vec{J}/J$. Por hora nenhuma forma específica para $E(J)$ será adotada. Ao considerar \vec{E} paralelo a \vec{J} estamos considerando apenas materiais que sejam isotrópicos no plano xz .

O problema central consiste então em encontrar, para esta geometria, uma equação de movimento para a densidade de corrente $\vec{J}(\vec{r}, t)$ que contenha explicitamente o campo aplicado $H_a(t)$ e incorpore a condição de contorno $H \rightarrow H_a$ para $|\vec{r}| \rightarrow \infty$. Para evitar uma computação explícita

do campo magnético no espaço infinito fora da amostra, busca-se uma equação para $\vec{J}(\vec{r}, t)$ que se aplique apenas no interior do cilindro⁸. Para amostras com simetria axial a densidade de corrente \vec{J} , o campo elétrico \vec{E} e o potencial vetor \vec{A} são todos paralelos, estando na direção azimutal. O potencial vetor do campo aplicado $\vec{B}_a = B_a \hat{y}$ é $\vec{A}_a = -(r/2) B_a \hat{\varphi}$. Utilizando as equações de Maxwell e que $\vec{B}_a = \mu \vec{H}_a$ obtemos a equação de Laplace $\mu_0 J = -\nabla^2 (A + \frac{r}{2} B_a)$, cuja solução é

$$A(\vec{r}) = -\mu_0 \int_0^a dr' \int_0^b dy' Q_{cil}(\vec{r}, \vec{r}') J(\vec{r}') - \frac{r}{2} \dot{B}_a \quad (4.24)$$

com $\vec{r} = (r, y)$ e $\vec{r}' = (r', y')$. O kernel

$$Q_{cil}(\vec{r}, \vec{r}') = f(r, r', y - y') + f(r, r', y + y'), \quad (4.25)$$

$$f(r, r', \eta) = \int_0^\pi \frac{d\varphi}{2\pi} \frac{-r' \cos \varphi}{(\eta^2 + r^2 + r'^2 - 2rr' \cos \varphi)^{1/2}} \quad (4.26)$$

é obtido da integração da função de Green 3D da eq. de Laplace na variável φ . A função $f(r, r', \eta)$ pode ser expressa em termos de integrais elípticas, mas no presente caso é mais conveniente calculá-la numericamente. Podemos ainda escrever a lei de indução $\nabla \times \vec{E} = -\dot{\vec{B}} = -\nabla \times \vec{A}$ como $E = -\dot{A}$ e, conhecendo a relação $E = E(J)$, temos como relacionar \dot{A} e J . Derivando a eq. 4.24 em relação ao tempo e eliminando A , obtemos⁹

$$E(J) = \mu_0 \int_S d^2 r' Q_{cil}(\vec{r}, \vec{r}') \dot{J}(\vec{r}') + \frac{r}{2} \dot{B}_a \quad (4.27)$$

Se quisermos estudar a resposta linear do sistema a um sinal periódico (por exemplo, senoidal) a eq. 4.27 é adequada, já que neste caso a dependência temporal de J é conhecida. No caso de uma dependência $E(J)$ não linear ou uma variação arbitrária da indução magnética $B_a(t)$, a integração temporal da eq. 4.27 deve ser feita numericamente. Neste caso, devemos inverter a relação acima para obter \dot{J} como um funcional explícito de J e \dot{B}_a . Isso pode ser feito tabulando o kernel $Q_{cil}(\vec{r}, \vec{r}')$ em uma grade bidimensional r_i, r_j e então invertendo a matriz Q_{ij} e, a partir desta, determinar $Q_{cil}^{-1}(\vec{r}, \vec{r}')$. A equação a ser resolvida então é

$$\dot{J}(\vec{r}, t) = \mu_0^{-1} \int_0^a dr' \int_0^b dy' Q_{cil}^{-1}(\vec{r}, \vec{r}') \left[E(J) - \frac{r'}{2} \dot{B}_a \right] \quad (4.28)$$

⁸No caso do cilindro infinito tal problema é trivial, já que $H = H_a$ se aplica em todo o exterior do cilindro. Mas para geometrias finitas ou para campo aplicado perpendicularmente à amostra, temos uma distorção do campo magnético próximo à amostra que tem de ser considerada no cálculo.

⁹As equações 4.24 e 4.27 podem ser facilmente generalizadas para qualquer geometria com simetria axial substituindo o limite de integração b por uma função $b(r)$, $r = (x^2 + z^2)^{1/2}$. A substituição $b(r) = (a^2 - z^2)^{1/2}$, por exemplo, modelaria uma amostra esférica.

Até o momento, nenhuma lei de voltagem específica foi adotada. Adotando um comportamento termicamente ativado obtemos, pela relação de Arrhenius,

$$E(J) = E_c \exp\left(-\frac{U(J)}{kT}\right) \quad (4.29)$$

Das teorias de “creep coletivo” [59, 105] e de vidro de vórtice [60], temos a fórmula de interpolação [16]

$$U(J) = U_0 \frac{(J_c/J)^\alpha - 1}{\alpha} \quad (4.30)$$

onde $U(J)$ é a energia de ativação de “depinnig”. Para $\alpha = -1$ nós temos o modelo de Anderson-Kim [4], $E(J) = E_c \exp\left(-\frac{U_0}{kT} (1 - J/J_c)\right)$; para $\alpha \rightarrow 0$ temos a lei de potência

$$\begin{aligned} E(J) &= E_c (J/J_c)^n, \\ n &= U_0/kT \end{aligned} \quad (4.31)$$

Esta expressão é extremamente útil na modelagem de supercondutores já que, ajustando o valor do expoente de creep n , podemos descrever diferentes regimes:

1. Para $n = 1$ a função 4.31 reduz-se simplesmente a lei de Ohm. Neste limite, então o modelo descreve um condutor ôhmico ou supercondutores no regime de escoamento de fluxo termicamente ativado (“*Thermally Activated Flux Flow - TAFF*”).
2. Para $n \rightarrow \infty$, correspondente a uma transição abrupta numa curva $E(J)$, temos o caso de um sistema onde os vórtices estão perfeitamente aprisionados e só temos movimentação de fluxo para $J > J_c$. Em outras palavras, este limite é equivalente ao modelo de Bean.
3. Para $1 \ll n < \infty$ temos uma resposta não linear, correspondente a um supercondutor no regime de arrastamento de fluxo (“*flux creep*”)¹⁰.

Dada sua versatilidade e simplicidade, utilizaremos a relação 4.31 nos cálculos a seguir.

O método de cálculo da integral 4.28 é apresentado em detalhes na referência [25]. Ele consiste basicamente em definir uma grade de pontos, igualmente espaçados ou não, onde o kernel Q_{cil}^{-1} é

¹⁰Em geral, tanto E_c quanto U dependem da indução magnética local $B(\vec{r})$. Desta forma, também $n(B, T)$ e $J_c(B, T)$ dependem de B . No entanto, para valores altos de indução magnética, esta dependência pode ser negligenciada.

tabulado e a densidade de corrente é discretizada. A equação 4.28 pode então ser reescrita como uma equação matricial:

$$\dot{J}_i(t) = \sum_j R_{ij} \left[J_j(t)^n - \frac{r_j}{2} \dot{B}_a(t) \right] \quad (4.32)$$

onde foi utilizada a expressão 4.31. O kernel R_{ij} é definido como $R_{ij} = (Q_{ij} w_j)^{-1}$, onde w_j é o peso associado aos pontos da grade ($w_j = ab/N$ para uma grade com pontos equidistantes, N = número total de pontos) e adotou-se unidades $a = J_c = E_c = 1$. A integração temporal da equação matricial 4.32 é então feita numericamente.

Uma vez obtida a densidade de corrente, podemos determinar a magnetização da amostra através da relação

$$m(t) = 2\pi \int_0^a dr r^2 \int_0^b dy J(r, y, t), \quad (4.33)$$

$$= 2\pi \sum_{j=1}^N r_j^2 J_j(t) w_j \quad (4.34)$$

Considerando uma dependência senoidal do campo aplicado com o tempo, $H_a = H_0 e^{i\omega t}$, a suscetibilidade AC complexa não linear $\chi_\gamma = \chi'_\gamma - i\chi''_\gamma$, $\gamma = 1, 2, 3, \dots$, é dada simplesmente por

$$\chi_\gamma(H_0, \omega) = \frac{i}{\pi H_0} \int_0^{2\pi} m(t) e^{-i\gamma\omega t} d(\omega t) \quad (4.35)$$

Já para o caso particular da resistividade $\rho = E/J$ ser linear, a resposta magnética do sistema também é linear e pode ser expressa da forma mais genérica possível pela suscetibilidade complexa linear $\chi(\omega)$. Neste caso, podemos resolver diretamente a equação 4.27, sem precisar inverter o kernel Q_{cil} . Introduzindo em 4.27 uma dependência temporal periódica $e^{i\omega t}$ para os campos magnético e elétrico, assim como para a densidade de corrente, obtemos para um cilindro em um campo magnético axial AC

$$\frac{\rho_{ac}(\omega)}{i\omega\mu_0} j(\vec{r}) = \int_S Q_{cil}(\vec{r}, \vec{r}') J(\vec{r}') d^2r' + \frac{r}{2} H_0 \quad (4.36)$$

Esta equação é correlata ao problema de autovalores

$$f_\nu(\vec{r}) = -\Lambda_\nu \frac{4\pi}{S'} \int_0^a dr' \int_0^b dy' Q_{cil}(\vec{r}, \vec{r}') f_\nu(\vec{r}') \quad (4.37)$$

com autovalores Λ_ν positivos e autoestados reais $f_\nu(r, y)$, $\nu = 1, 2, \dots, \infty$. A área arbitrária S' foi introduzida para que f_ν e Λ_ν sejam adimensionais. Uma escolha natural seria $S' = S = 4ab$ no

limite $b \gg a$ (cilindro longo) e $S' = 16a^2/\pi$ no limite $b \ll a$ (disco fino)¹¹. Os autoestados podem então ser normalizados por

$$\frac{4\pi}{S'} \int_0^a r dr \int_0^b f_\mu(\vec{r}) f_\nu(\vec{r}) dy = \delta_{\mu\nu} \quad (4.38)$$

Expandindo $J(\vec{r})$ nos autoestados

$$J(\vec{r}) = \sum_\nu a_\nu f_\nu(\vec{r}) \quad (4.39)$$

obtemos a partir das relações acima o momento magnético $m(t) = m(\omega) e^{i\omega t}$, com

$$m(\omega) = 2\pi \int_0^a r^2 dr \int_0^b J(r, y) dy = \frac{S'}{2} \sum_\nu a_\nu b_\nu \quad (4.40)$$

onde definimos a “força de oscilador”

$$b_\nu = \frac{4\pi}{S'} \int_S r^2 f_\nu(r, y) d^2r \quad (4.41)$$

Multiplicando a eq. 4.36 por f_ν e integrando na área S em ambos os lados com o auxílio das expressões 4.37 e 4.38, obtemos os coeficientes da expansão 4.39:

$$a_\nu = H_0 \frac{2\pi}{S'} \frac{w\Lambda_\nu}{w + \Lambda_\nu} b_\nu, \quad (4.42)$$

$$w = \frac{i\omega\mu_0 S'}{4\pi\rho_{ac}(\omega)} = \frac{S'}{4\pi\lambda_{ac}^2} \quad (4.43)$$

e o momento magnético 4.40 fica então

$$m(\omega) = H_0 \pi w \sum_\nu \frac{\Lambda_\nu b_\nu^2}{w + \Lambda_\nu} \quad (4.44)$$

Podemos finalmente escrever a suscetibilidade linear como

$$\chi(\omega) = - \sum_\nu \frac{w c_\nu}{w + \Lambda_\nu}, \quad (4.45)$$

$$c_\nu = \Lambda_\nu b_\nu^2 / \sum_\nu \Lambda_\nu b_\nu^2 \quad (4.46)$$

onde a normalização 4.46 garante que $\chi \rightarrow -1$ quando $\omega \rightarrow \infty$. Regras de soma para b_ν^2 , $\Lambda_\nu b_\nu^2$ e b_ν^2/Λ_ν para faixas e discos finos são dadas na referência [19].

¹¹Para uma discussão mais detalhada sobre a escolha de S' , ver Ref. [25].

4.2.1 Universalidade da movimentação de fluxo e lei de escala para a suscetibilidade AC

Ainda que os trabalhos de Brandt não forneçam expressões analíticas para a suscetibilidade de quadrados e cilindros finitos, um outro resultado importante surge destes cálculos. Como apontado pelo próprio Brandt, ao adotarmos uma lei de corrente-voltagem do tipo de lei de potência, eq. 4.31, temos como consequência imediata uma lei de escala entre tempo e grandezas magnéticas [24]. De fato, se nós mudarmos a unidade de tempo por um fator constante c e as unidades de corrente e campo por um fator $c^{-1/\sigma}$, onde $\sigma = \partial \ln(E)/\partial \ln(J)|_{J \rightarrow J_c} - 1 = n - 1$, as equações 4.27 e 4.28 permanecem invariantes¹². Em particular, para uma indução magnética periódica $H_a(t) = h_0 \sin(\omega t)$, a forma da curva de histerese $m(H_a)$ permanece inalterada se aumentamos a frequência ω de um fator c e h_0 de um fator $c^{1/\sigma}$. Uma consequência interessante de tal lei de escala é que a suscetibilidade AC normalizada $\chi(h_0, \omega)$ depende apenas das combinações $B_0/\omega^{1/\sigma}$ ou ω/B_0^σ . Assim, se medimos a suscetibilidade AC a uma dada frequência para diversas amplitudes do campo excitador, a lei de escala acima nos fornece a suscetibilidade para diferentes frequências¹³. Esta lei de escala apresenta os resultados esperados nos dois limites: para $\sigma = 0$ (condutor ôhmico) temos uma dependência da suscetibilidade apenas com a frequência, $\chi = \chi(\omega)$, e para $\sigma \rightarrow \infty$ (supercondutor no estado crítico) a suscetibilidade independe da frequência $\chi = \chi(B_0)$.

Antes de partirmos para o estudo experimental desta lei de escala, vamos tentar entender um pouco melhor o que está se passando aqui. Esta é uma lei de escala interessante por surgir de um cálculo eletrodinâmico de primeiros princípios, com muito poucas hipóteses adotadas *a priori*, e que descreve diversos regimes de movimentação de vórtices dentro de uma única formulação. O único elemento importante que é introduzido *ad hoc* é a forma específica da lei de corrente-voltagem $E(J)$. É através desta escolha que caracteriza-se o material a ser modelado. No entanto, devemos ter bem claro alguns pontos importantes sobre esta escolha e sobre o comportamento universal decorrente. A primeira questão é que a adoção de uma lei de potências para $E(J)$ foi uma escolha conveniente mas,

¹² A lei de escala de Brandt vale para qualquer relação de corrente-voltagem suficientemente não linear. No caso da lei de potência dada pela Eq. 4.31, o expoente σ assume a forma simples $\sigma = n - 1$, estando diretamente associado ao expoente de creep n . Já para uma lei de corrente-voltagem qualquer devemos utilizar sua forma mais geral, indicada no texto.

¹³ Uma outra consequência é que os gráficos polares $\chi''(\chi')$, onde $\chi = \chi' - i\chi''$ é a susceptibilidade ac complexa, dependem apenas do expoente σ .

de forma alguma, era a única possível. De fato, para que tenhamos esta lei de escala, a única exigência que a lei de corrente-voltagem deve satisfazer é a de ser uma relação suficientemente não linear. Esta questão será tratada em maiores detalhes quando discutirmos os resultados experimentais.

Um segundo ponto vem da relação deste comportamento universal da suscetibilidade AC e certos resultados sobre relaxação magnética (outro processo explicitamente dependente do tempo). Ao longo da década passada, Gurevich e colaboradores mostraram numa série de artigos que, tanto para geometrias longitudinais [71, 68] quanto transversas [69, 68], o campo elétrico $E(\mathbf{r}, t)$ gerado pela relaxação do perfil de campo magnético na amostra é universal se $E(J)$ for suficientemente não linear. Isso significa que, após um certo transiente t_1 , pode-se escrever $E(\mathbf{r}, t) = f(\mathbf{r})g(t)$ onde o perfil $f(\mathbf{r})$ é universal [23]. Brandt estendeu estes trabalhos mostrando que este procedimento é mais geral do que o inicialmente proposto por Gurevich, sendo a universalidade da movimentação de vórtice válida para amostras supercondutoras de formato arbitrário e com $E(J)$ sendo uma lei de potências, eq. 4.31 [23]. Posteriormente, Gurevich e Brandt juntaram forças para, dentro do mesmo espírito dos trabalhos anteriores, determinar a resposta magnética de filmes finos supercondutores no regime de creep [70]. Podemos reforçar a idéia, a partir dos resultados destes trabalhos, de que esta lei de escala proposta por Brandt é algo bastante fundamental e que um estudo criterioso desta questão do comportamento universal da movimentação de fluxo pode ser de grande interesse para entender em profundidade o significado de medidas de suscetibilidade AC no regime de movimentação de vórtices. De fato, a situação é extremamente complexa e exige cuidado. Nas palavras de Gurevich e Brandt [23]:

An applied AC field $B_a(t)$ induces an electric-field perturbation $\delta E(r, t)$ on a time-dependent background electric-field $E_0(t)$. The time evolution of $E_0(t)$ is accompanied by a corresponding decrease of the differential resistivity $\rho \propto 1/t$, which in turn determines the dynamics of δE . In this case not only the calculation, but also the notion of a magnetic susceptibility $\chi(\omega)$ become nontrivial.

Ainda que esta seja uma questão interessante e importante, uma discussão detalhada deste tema está além do que podemos fazer neste trabalho. Vamos a partir de agora nos concentrar apenas na formulação de uma lei de escala para a suscetibilidade e na sua verificação experimental. Ao leitor interessado, sugerimos o estudo das referências citadas acima.

Capítulo 5

Leis de escala para a suscetibilidade AC

Nos últimos dois capítulos apresentamos uma série de modelos teóricos para medidas de suscetibilidade AC em amostras supercondutoras de diferentes formas, em diferentes regimes e configurações de campo. Da análise destes resultados obtivemos duas leis de escala a princípio distintas: nos casos onde, aplicando o modelo de Bean, era possível obter expressões analíticas para a suscetibilidade, vimos que esta depende apenas da fração da amostra penetrada pelo campo alternado, $x = h_0/h^*$; já as geometrias mais complexas foram tratadas numericamente e observamos que as equações de movimento obtidas para a densidade de corrente são invariantes frente a certos rescalonamentos dos campos, correntes e do tempo.

Nosso objetivo nesta parte deste trabalho foi, em primeiro lugar, verificar experimentalmente a validade da lei de escala proposta por Brandt. Com o andamento do projeto, verificamos a necessidade de se construir uma lei de escala mais geral para ser possível explicar todos os resultados experimentais obtidos. Isto foi feito reinterpretando a lei de escala de Brandt, tendo em mente os resultados universais obtidos dos cálculos com o modelo de Bean. Finalmente, observamos que tal lei de escala fornece informações importantes sobre a dinâmica de vórtices e a aplicamos ao estudo do segundo pico na magnetização, observado em certas amostras.

5.1 Verificação da lei de escala de Brandt

Como apresentado anteriormente, em seu cálculo da magnetização e suscetibilidade AC para cilindros finitos (Refs. [25, 26])¹, Brandt verificou que mudando-se a unidade de tempo por um fator constante c e as unidades de corrente e campo por um fator $c^{-1/\sigma}$ as equações de movimento para E e J (Eqs. 4.27 e 4.28) permanecem invariantes. Para podermos verificar experimentalmente a validade desta lei de escala, vamos primeiramente rephraseá-la de forma a obtermos uma forma mais direta de aplicá-la aos dados medidos.

Consideremos duas medidas de suscetibilidade $\chi(h, \nu)$ e $\chi(\tilde{h}, \tilde{\nu})$ feitas nas mesmas condições (mesma amostra, campo aplicado e temperatura), mas adotando-se diferentes frequências e amplitudes do campo excitador². Estando ambas as medidas normalizadas tal que $\chi(h \rightarrow 0, \nu) = \chi(h, \nu \rightarrow \infty) = -1$, o que a lei de escala de Brandt prediz é que tais medidas coincidirão quando consideradas em função da amplitude escalonada

$$\tilde{h} = h \left(\frac{\tilde{\nu}}{\nu} \right)^{1/\sigma} \quad (5.1)$$

Veja que na equação acima o único parâmetro que não é definido por nós é o expoente σ . Este então é o único parâmetro livre que temos para determinar a amplitude escalonada. Para testar esta lei de escala³, aplicamos o seguinte procedimento:

1. Para uma dada amostra, temperatura e campo magnético aplicado, realizamos um conjunto de medidas de $\chi(h)$ para diferentes frequências entre 10 e 10000 Hz, onde $0.1 \leq h \leq 17$ Oe.
2. Para cada conjunto de medidas determinamos um único valor de σ capaz de fazer as medidas para todas as frequências coincidirem numa única curva universal $\chi(\tilde{h})$, tal como esquematizado na figura 5.1; se tal procedimento é bem sucedido, concluímos pela validade da lei de escala neste caso. Importante ressaltar que utilizamos neste passo apenas a componente real da suscetibilidade para determinar o expoente σ . O escalonamento da componente imaginária decorre automaticamente.

¹A idéia de que tal escalonamento seja possível já havia sido citada rapidamente por Brandt em outros trabalhos anteriores. Entretanto, apenas nestes trabalhos é que esta questão recebeu um tratamento mais detalhado.

²Por simplicidade suprimimos o subscrito na amplitude do campo excitador nesta parte do trabalho. Assim, ao invés de h_0 a amplitude do campo excitador passa a ser indicada simplesmente por h .

³C. A. Cardoso e O. F. de Lima, Physica C 334 (2000), 185; Physica C 341-348 (2000), 1295.

3. Tal procedimento foi repetido para 4 diferentes amostras, que seriam 2 amostras de nióbio (uma mono-, outra policristalina), uma amostra de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ MTG (“Melt Textured Grown”) e uma amostra monocristalina de $ErBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Desta forma pudemos testar a lei de escala em condições extremas de materiais supercondutores, indo de baixas a altas temperaturas críticas, de aprisionamento de vórtices fraco a forte.
4. Finalmente, repetimos todo este conjunto de medidas variando um dos parâmetros que haviam sido mantido fixos. No caso das 3 primeiras amostras listadas acima, variamos a temperatura mantendo o campo aplicado constante (e assim determinamos $\sigma(T)$); para a amostra de Er : 123 variamos o campo aplicado, mantendo a temperatura constante (obtendo $\sigma(H)$).

Antes, porém, de iniciarmos este procedimento todo para testar a validade da lei de escala de Brandt, alguns testes adicionais são necessários. Primeiramente, devemos determinar para qual intervalo de temperatura estas amostras apresentam uma resposta não linear, indispensável para satisfazer as condições de validade dos cálculos de Brandt. Para tanto, fizemos uma medida de $\chi \times T$ para as três primeiras amostras (as barras de nióbio e a YBCO-MTG), apresentada na figura 5.2. Para temperaturas muito baixas temos a blindagem perfeita do campo excitador e a lei de escala não mais é verificada. Já para temperaturas muito próximas de T_c , o sistema entra no regime de escoamento de fluxo termicamente ativado, o que significa uma resposta linear e novamente não verifica-se a lei de escala. Além disso, para tais temperaturas, a movimentação de vórtices é muito intensa. Isto leva a uma grande dissipação de energia e o consequente aquecimento local da amostra. Este limitante experimental impossibilita uma discussão confiável da lei de escala mesmo antes dos vórtices estarem completamente soltos dos centros de aprisionamento.

Outro ponto importante a que devemos estar atentos é qual seria o mecanismo por trás desta resposta não linear. Se este mecanismo for volumétrico, associado ao estabelecimento de um estado crítico na amostra, a interpretação que podemos dar aos resultados obtidos certamente é diferente do que teríamos caso o mecanismo básico fosse, por exemplo, a presença de barreiras superficiais. Para verificar se a suscetibilidade está sendo definida por uma resposta volumétrica ou não, podemos utilizar o teste gráfico proposto por Civalé *et al* [41], que apresentamos na figura 5.3.

Este teste se baseia no seguinte raciocínio: Considere um conjunto de medidas $\chi \times T$, feitas a uma dada frequência e para diferentes amplitudes do campo excitador. Se o modelo de estado crítico

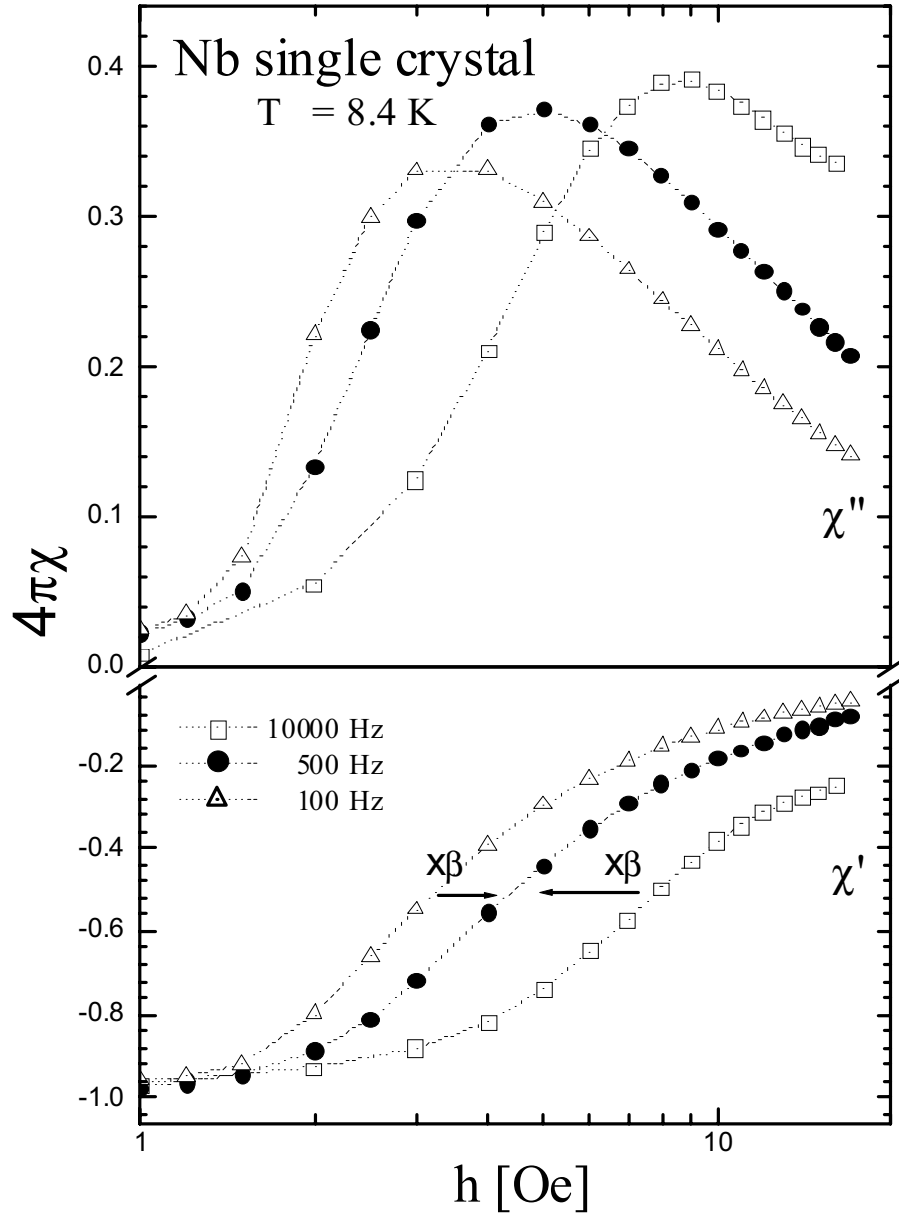


Figura 5.1: Suscetibilidade AC em função da amplitude do campo excitador. O processo de escalonamento consiste em determinar o fator multiplicativo $\beta = (\tilde{\nu}/\nu)^{1/\sigma}$ que, aplicado ao eixo das abscissas, faz com que todas as curvas colapsem sobre a medida de referência.

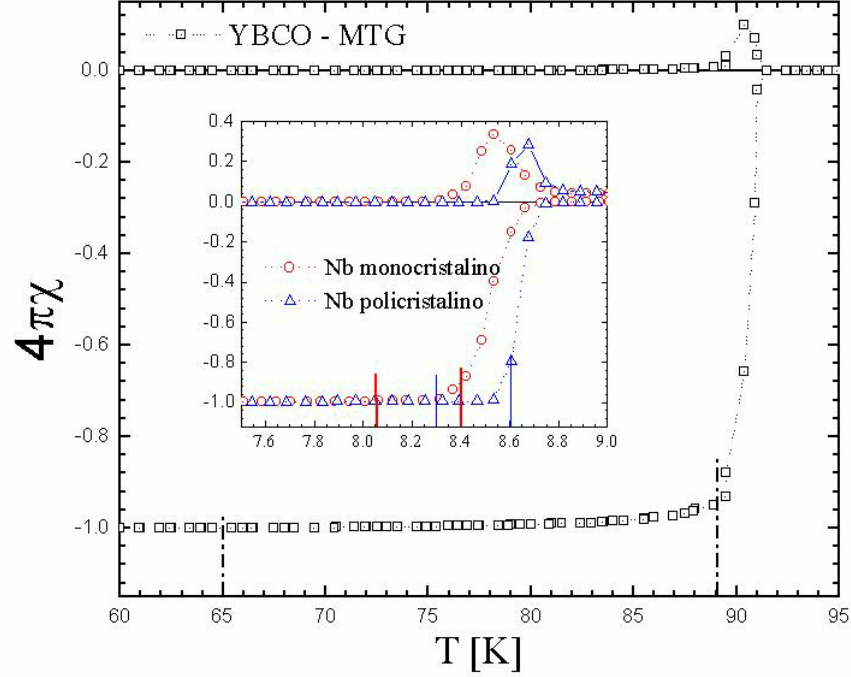


Figura 5.2: Suscetibilidade AC em função da temperatura para a amostra YBCO-MTG e as amostras de nióbio (detalhe). As linhas verticais delimitam o intervalo de temperatura, para cada amostra, onde a lei de escala é verificada.

se aplica, nós temos

$$J_c \propto h_0/L_p \quad (5.2)$$

onde L_p é a profundidade de penetração de Bean. Assim, se pegarmos linhas horizontais ($\chi' = cte$), nós teremos em todos os pontos em que estas retas cortarem os dados experimentais a mesma profundidade de penetração $L_p = cte$ (já que a suscetibilidade é função exclusivamente de L_p). Ou seja, a razão h_0/J_c tem de permanecer constante nestas retas. Por outro lado, a densidade de corrente crítica na amostra é uma função da temperatura apenas neste experimento. Assim, as linhas verticais devem representar um único valor de J_c . Considerando a figura 5.3, temos então que

$$J_c(P) = J_c(Q), \quad L_p(P) = L_p(R), \quad L_p(Q) = L_p(S) \quad (5.3)$$

Como o ponto P pertence à curva com $h_0 = 4$ Oe e R à curva com $h_0 = 8$ Oe, temos das relações 5.2 e 5.3 que $J_c(R) = 2J_c(P)$; analogamente, temos que $J_c(S) = 2J_c(Q)$ e assim $J_c(R) = J_c(S)$. Os

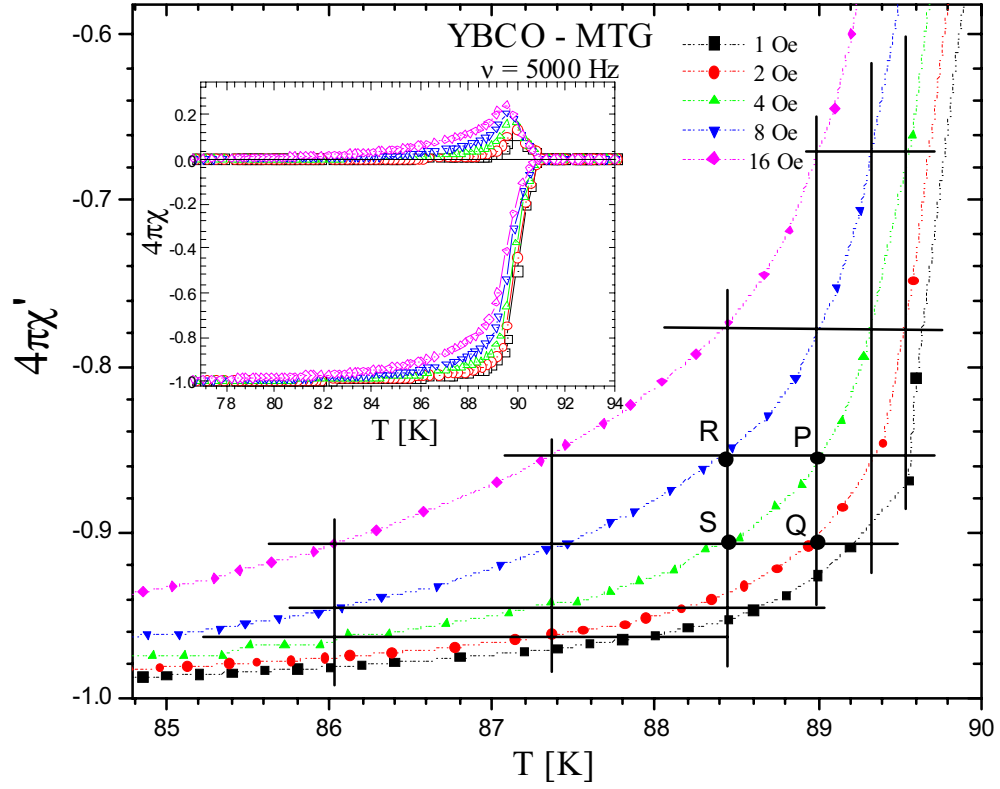


Figura 5.3: Teste gráfico da validade do modelo de estado crítico de Bean, para a amostra YBCO-MTG. No destaque apresentamos as curvas inteiras, tanto para componente real quanto imaginária da suscetibilidade.

pontos R e S devem estar então na mesma vertical, como de fato é verificado experimentalmente. Tendo as amplitudes utilizadas nas medidas (h, h_1, h_2, \dots) uma razão constante entre si (ou seja $h = \alpha h_1 = \alpha^2 h_2 = \dots$), o modelo de Bean será válido se for possível desenhar um retângulo com linhas horizontais e verticais tal que seus vértices pertençam as curvas medidas (tal como o retângulo $PQRS$ na figura 5.3). Este método gráfico permite ainda estimar o valor absoluto da densidade de corrente crítica para diferentes temperaturas. Obtendo o valor absoluto de J para uma dada temperatura, é possível então obter J para as demais temperaturas. Esta informação pode ser obtida utilizando o máximo dissipativo em χ'' , já que no estado crítico nós teremos este máximo quando a perturbação do campo excitador atingir o centro da amostra, o que nos leva a $J_c = h_0/d$. Este método, entretanto, apresenta resultados confiáveis apenas para temperaturas próximas da transição supercondutora, onde χ' depende fortemente com a temperatura e tem uma resposta altamente não linear. Para temperaturas menores, não apenas temos o sistema caminhando para uma resposta linear como a incerteza na aplicação do método gráfico aumento demais, inviabilizando uma estimativa precisa de J_c . A figura 5.3, utilizada para ilustrar o método de Civalé, mostra que para o intervalo de temperatura definido na figura 5.2 o comportamento magnético da amostra YBCO-MTG está de acordo com o modelo de estado crítico. Este mesmo teste foi feito para as demais amostras (não apresentado aqui) e, da mesma forma, observamos que a suscetibilidade magnética, para as temperaturas de interesse, é dominada pela resposta associada ao modelo de estado crítico.

Sabendo agora que a suscetibilidade magnética medida tem um caráter volumétrico para um dado intervalo de temperatura, dentro do qual a resposta é claramente não linear, estamos prontos para analisar a validade da lei de escala em si.

5.2 Amostras de nióbio

Para testarmos a lei de escala de Brandt para supercondutores clássicos adotamos duas barras de nióbio de alta pureza ($> 99.9\%$) de mesmas dimensões $1 \times 1 \times 3 \text{ mm}^3$. A barra monocristalina apresenta $T_c = 9.25 \text{ K}$ e foi cortada de um longo cilindro com 3.4 mm de diâmetro, orientado ao longo da direção $[110]$. Já a barra policristalina tem $T_c = 9.39 \text{ K}$ e foi cortado de uma barra maior que havia sido mecanicamente deformada, sendo, portanto, um material com grande densidade de defeitos. Ambas as barras foram quimicamente polidas para se eliminar uma camada superficial

de aproximadamente $500 \mu m$ de espessura. Esta camada superficial foi muito danificada durante o corte das amostras, apresentando então um fator de Gizburg-Landau κ muito maior que o observado para o interior da amostra [50]. A remoção desta camada externa, portanto, visava a obtenção de uma amostra mais homogênea.

Resultados típicos de $\chi \times h$ para ambas as amostras estão apresentadas nas figuras 5.4 e 5.5. Todas as medidas foram realizadas aplicando-se um campo magnético estático $H_{dc} = 500$ Oe com a amostra no estado normal; a seguir, a amostra é resfriada até a temperatura de medida. Desta forma buscamos garantir o estabelecimento de um perfil de fluxo crítico bem definido em toda a amostra.

Podemos verificar a partir das figuras 5.4 e 5.5 a excelente sobreposição de todas as curvas medidas com diferentes frequências do campo excitador, quando utilizamos um único expoente σ . Este resultado atesta a validade da lei de escala de Brandt nestas condições. O maior espalhamento das curvas para pequenas amplitudes do campo excitador ($h \lesssim 1$ Oe) pode ser entendido como uma deterioração da razão sinal-ruído, que se torna mais crítica conforme a frequência do campo excitador é reduzida. Podemos observar ainda uma transição entre a situação de blindagem perfeita (com resposta linear) e a de resposta histerética não linear para $h \sim 3$ Oe. Como seria esperado, o colapso das diferentes curvas não é tão bom para amplitudes abaixo deste valor. O ajuste da lei de escala nos fornece ainda o valor do expoente σ . Este expoente está relacionado ao expoente de creep n , quando adota-se um lei de potência para $E(J)$, simplesmente pela relação $\sigma = n - 1$. Desta forma, obtemos para o expoente de creep valores bastante altos, indicando a extremamente baixa movimentação de vórtices observada nestes materiais a temperaturas suficientemente distantes de T_c . Isto é condizente com os ótimos resultados que se obtêm ao se aplicar diretamente o modelo de Bean (desprezando efeitos de relaxação magnética) a estes materiais.

Nas figuras 5.6 e 5.7 apresentamos os resultados obtidos a uma temperatura mais alta, próxima da temperatura de liberação dos vórtices dos seus centros de aprisionamento. Observamos que também neste caso a lei de escala é, grosso modo, observada. Desvios significativos só são observados para a componente imaginária da suscetibilidade, χ'' , na região ao redor do pico. Entretanto é interessante observar que ainda que neste caso as curvas não colapsem bem, o valor da amplitude escalonada em que ocorre o pico em χ'' , \tilde{h}_{pico} , é exatamente o mesmo para todas as frequências. Isto é interessante, pois o surgimento do pico em χ'' é interpretado, no modelo de Bean, como ocorrendo no momento em

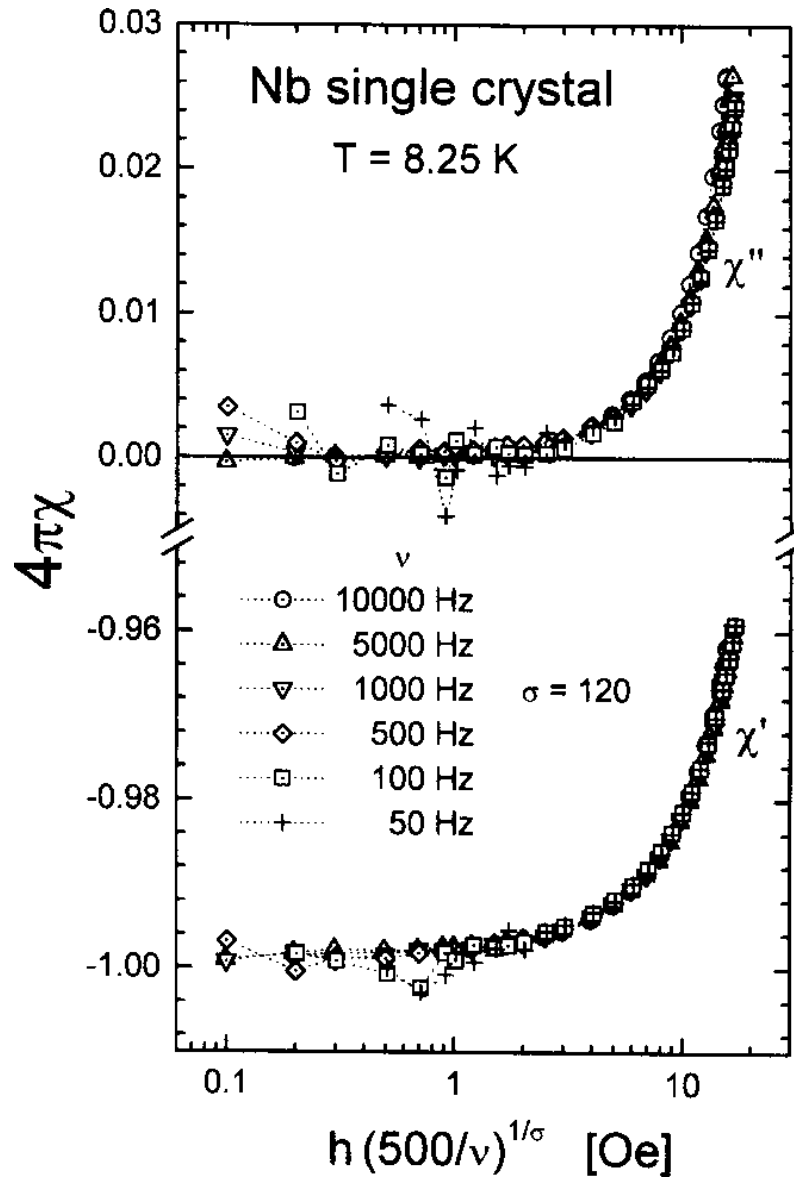


Figura 5.4: Suscetibilidade AC em função da amplitude escalonada, para amostra de nióbio monocristalino. Observa-se o bom colapso das curvas para diferentes frequências adotando-se o valor único $\sigma = 120$.

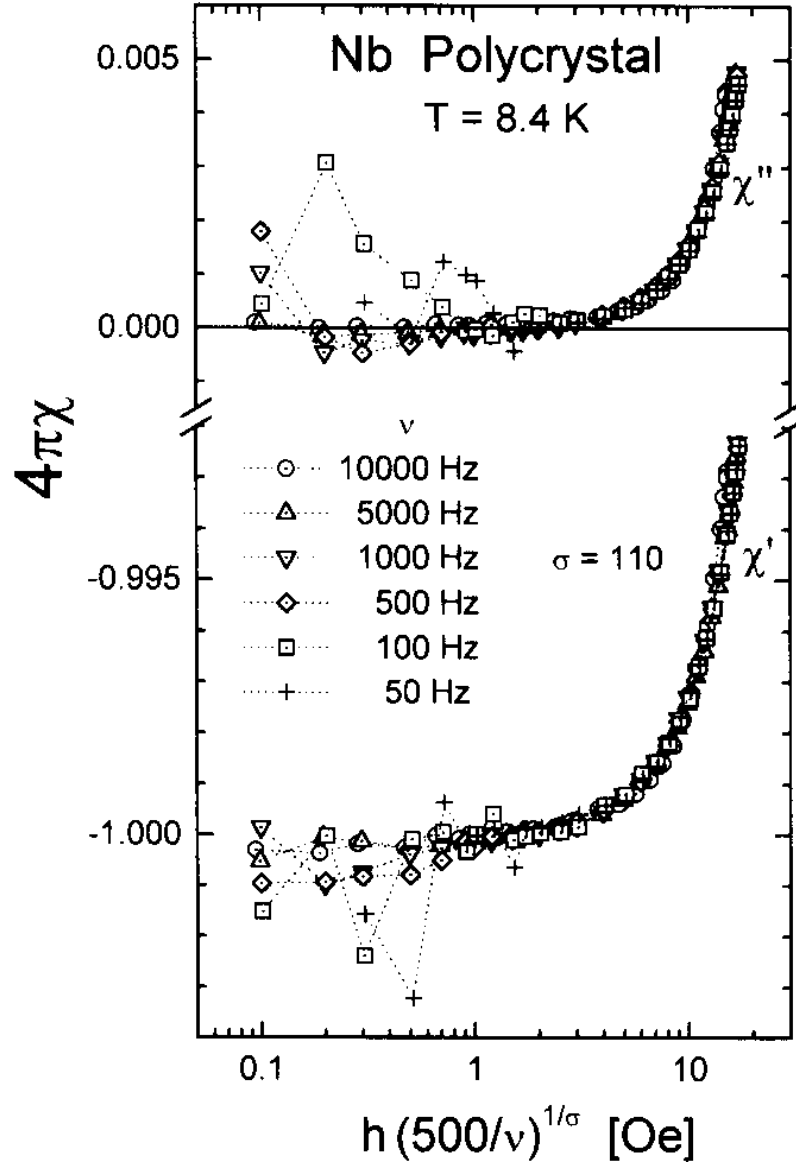


Figura 5.5: Suscetibilidade AC em função da amplitude escalonada, para amostra de nióbio policristalino. Observa-se o bom colapso das curvas para diferentes frequências adotando-se o valor único $\sigma = 110$.

que o campo excitador penetra toda a amostra e \tilde{h}_{pico} poderia ser associado à densidade de corrente crítica. Assim, ao escalonarmos χ' obtemos diretamente o escalonamento de χ'' e, indiretamente, de J_c . Esta observação é reforçada pela análise das derivadas de χ'' , $\text{Der}(\chi'') = \partial\chi''/\partial\tilde{h}$, apresentadas nos insets das figuras. Pode-se ver destes resultados que as curvas para as diferentes frequências cruzam-se exatamente no ponto onde $\text{Der}(\chi'') = 0$, indicando a coincidência dos picos.

A questão da má sobreposição das curvas de χ'' em torno do pico podem ser entendida se considerarmos o possível aquecimento local da amostra. Nesta região de intensa movimentação de vórtices [133], a dissipação de energia associada a este arrastamento de fluxo [44], $P \propto h^2\nu^{1/2}$, pode levar a um significativo aquecimento local da amostra. Com isso teríamos um aumento espúrio em χ'' para amplitudes e frequências maiores, o que é condizente com os resultados obtidos. Além disso, outros fatores podem estar sendo revelados aqui, uma vez que estamos a temperaturas próximas da temperatura crítica. Regiões com uma T_c inferior a da média da amostra, por exemplo, poderiam já estar no estado normal e, desta forma, contribuir com uma dissipação adicional que não teria sido levada em conta pela teoria.

Apesar de todos os problemas decorrentes do auto-aquecimento da amostra, conseguimos escalar os dados utilizando um único expoente σ para todas as frequências. Os valores obtidos para σ para estas temperaturas altas é muito menor do que o observado a temperaturas mais baixas. Isto fica evidente na figura 5.8, onde apresentamos o expoente de creep $n = \sigma + 1$ em função da temperatura para ambas as amostras. Vemos que a temperaturas baixas n é basicamente elevado e essencialmente constante, sofrendo uma abrupta redução quando nos aproximamos de T_c . Isto é condizente com o esperado para um supercondutor clássico. Neste caso, o sistema apresenta um comportamento condizente com o modelo de Bean (n infinito corresponde a perfis de campo rígidos, sem relaxação magnética) para temperaturas baixas, passando para uma região de intensa movimentação de vórtices com o aumento da temperatura. É tentador associar tal mudança de comportamento com a ocorrência da liberação da rede de vórtices dos centros de aprisionamento (deppinig/melting). Ainda que esta pareça ser uma interpretação válida, a determinação de uma linha de deppinig/melting é um tema bastante delicado e acreditamos que mais trabalho deva ser desenvolvido neste sentido antes que possamos fazer afirmações mais fortes sobre este tema⁴.

⁴ A cautela aqui justifica-se por várias questões. Em particular, a razoavelmente restrita janela de temperaturas onde podermos aplicar esta lei de escala torna este tipo de discussão um tanto quanto delicada. Outro ponto importante é a insensibilidade da lei de escala para valores altos de σ , assunto este que abordamos a seguir.

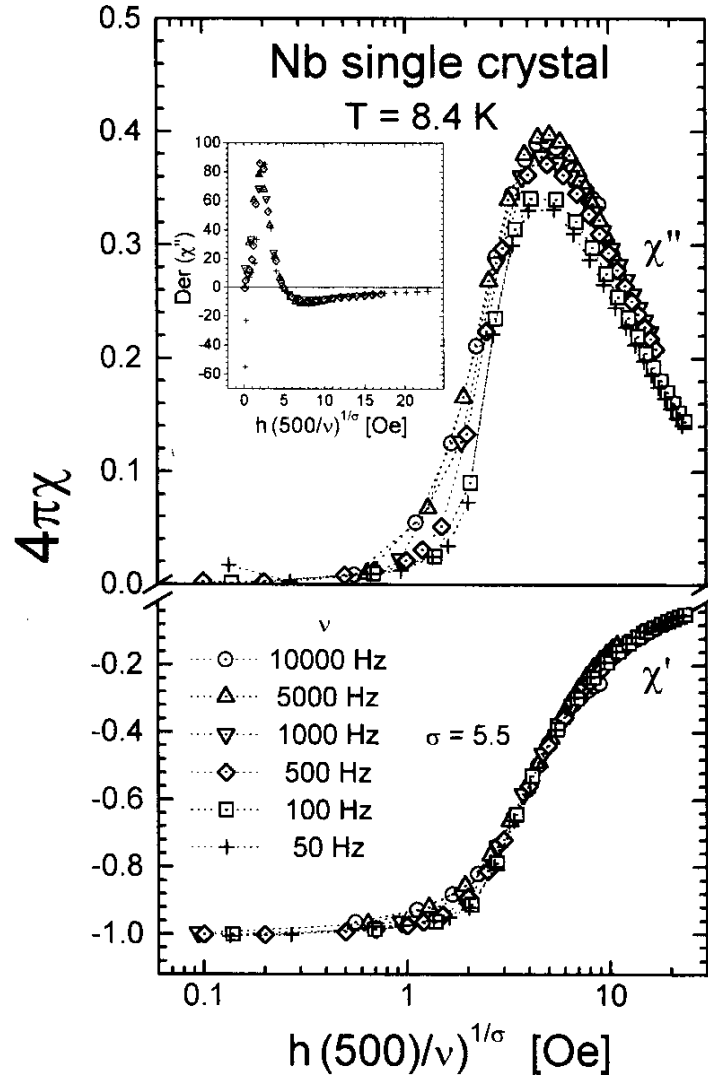


Figura 5.6: Suscetibilidade AC em função da amplitude escalonada, para amostra de nióbio monocristalino, para $T = 8.4$ K. Observa-se o bom colapso das curvas para diferentes frequências adotando-se o valor único $\sigma = 5.5$. O inset mostra a derivada da componente imaginária da suscetibilidade em função da amplitude escalonada, indicando que os picos em χ'' ocorrem para o mesmo valor de \tilde{h} .

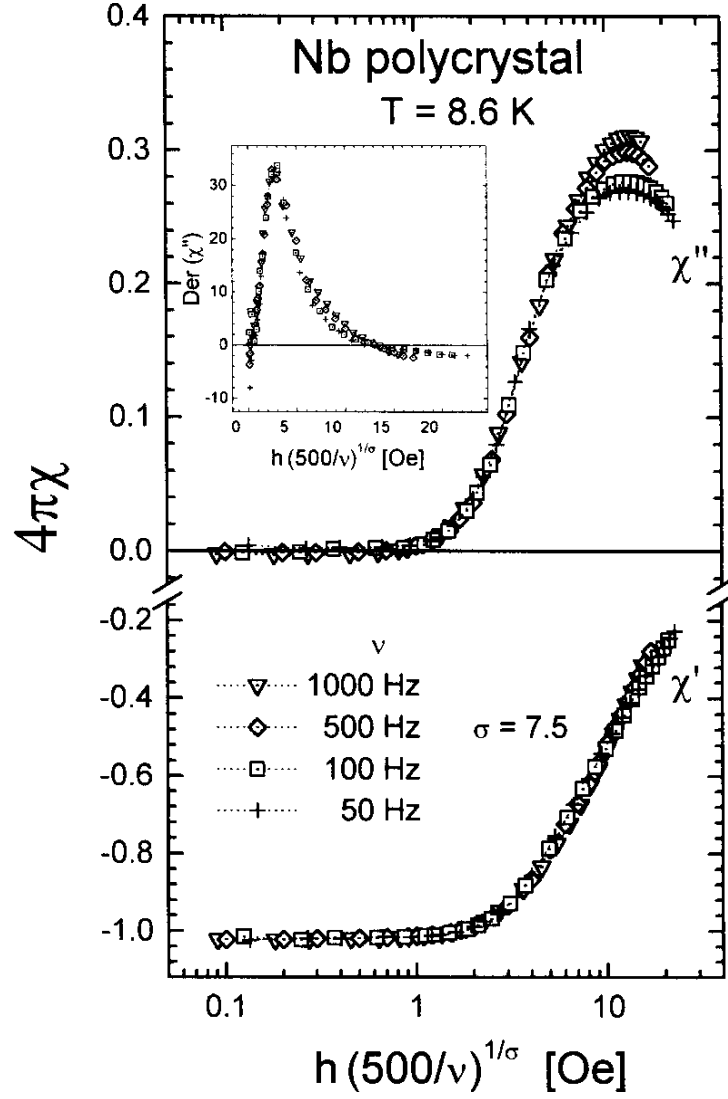


Figura 5.7: Suscetibilidade AC em função da amplitude escalonada, para amostra de nióbio policristalino, para $T = 8.6$ K. Observa-se o bom colapso das curvas para diferentes frequências adotando-se o valor único $\sigma = 7.5$. O inset mostra a derivada da componente imaginária da suscetibilidade em função da amplitude escalonada, indicando que os picos em χ'' ocorrem para o mesmo valor de \tilde{h} .

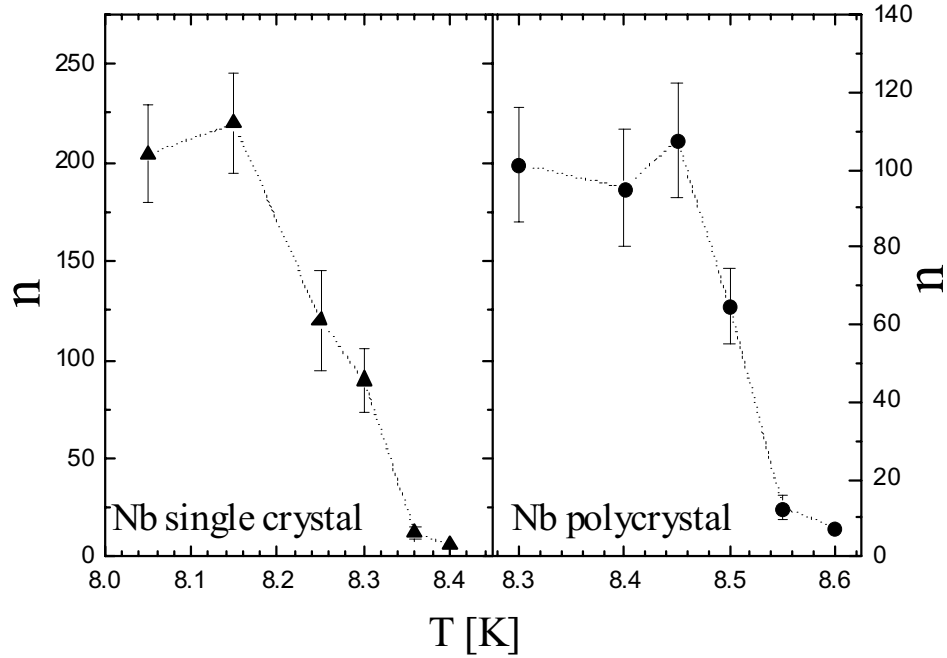


Figura 5.8: Expoente de creep $n = \sigma + 1$ para ambas as amostras de nióbio.

Chama a atenção na figura 5.8 as grandes barras de erro estimadas para os valores de σ determinados a temperaturas baixas. Isto era esperado e está de acordo com o modelo de Bean (que já mostramos ser apropriado para temperaturas mais baixas). De fato, pelo modelo de Bean esperaria-se que a suscetibilidade AC fosse independente da frequência e assim todas as medidas que fizemos para diferentes frequências deveriam naturalmente coincidir. Como na realidade sempre temos alguma movimentação de fluxo, ainda que mínima, estas medidas são ligeiramente diferentes. Temos então de modificar muito pouco a escala da amplitude ($h_\nu \sim \tilde{h}$) para fazer as curvas coincidirem. Isto significa $1/\sigma \sim 0$, ou seja, valores muito altos de σ (e, portanto, de n). Nesta situação, grande mudanças em σ significam mudanças mínimas na sobreposição de $\chi(h)$ e é esta pequena sensibilidade do escalonamento ao parâmetro de ajuste σ que é o principal responsável pelas grandes barras de erro em n para temperaturas baixas.

5.3 Amostra YBCO-MTG

Uma vez tendo verificado a validade da lei de escala para as amostras de nióbio (supercondutores clássicos), vamos agora repetir o mesmo procedimento para supercondutores de alta temperatura crítica. Nas figuras 5.9 e 5.10 apresentamos o escalonamento de diversas medidas para diferentes frequências para temperaturas baixa (Fig. 5.9) e próxima de T_c (Fig. 5.10). Para todas as temperaturas testadas no intervalo definido na Fig. 5.2, não foi possível escalonar as medidas para diferentes frequências (para cada temperatura fixa) adotando-se um único expoente σ . Entretanto, como mostrado nas figuras 5.9 e 5.10, tal escalonamento é possível desde que adotemos um expoente diferente para cada frequência, $\sigma(\nu)$. Tal solução, entretanto, não é aceitável. De fato, uma vez que $\sigma = n - 1$ dentro da lei de escala de Brandt, temos que $\sigma(\nu) \rightarrow n(\nu)$ e tal dependência para o expoente de creep é, no mínimo, questionável. Devemos, pois, buscar uma interpretação plausível para esta dependência do expoente $\sigma(\nu)$. De qualquer forma, podemos concluir que a lei de escala, tal como formulada por Brandt não se aplica para a amostra YBCO-MTG.

Vamos, por hora, ignorar esta questão da dependência de σ com a frequência e nos concentrar nos resultados obtidos. O que vemos é um resultado bastante semelhante ao observado para as amostras de nióbio. Temos um excelente escalonamento de χ' e o consequente escalonamento de χ'' , pelo menos a temperaturas baixas. Para tais temperaturas, observamos que os valores obtidos para σ encontram-se entre 6 e 13, muito abaixo, portanto, dos valores $\sigma \sim 150 - 200$ obtidos para a amostra de nióbio a temperaturas suficientemente baixas. Vemos, portanto, que a movimentação de vórtices para a amostra YBCO-MTG é muito mais intensa do que no caso dos supercondutores clássicos, o que era esperado.

Para temperaturas mais altas (ver Fig. 5.10) vemos que a sobreposição das curvas de χ'' para diferentes frequências é ainda pior do que o obtido no caso das amostras de nióbio, ainda a posição dos picos em χ'' também coincidam no caso da amostra YBCO-MTG. Entretanto, como para esta amostra a movimentação de vórtices é muito intensa, os efeitos de auto-aquecimento devem ser particularmente fortes para a amostra YBCO-MTG e podem explicar tais discrepâncias. De fato, tal auto-aquecimento neste caso é tão intenso que pode ser observado diretamente. Durante a realização destas medidas, pudemos observar um contínuo aumento da temperatura da amostra de até 0.5 K acima da temperatura de equilíbrio enquanto o sistema mantinha o campo excitador aplicado para

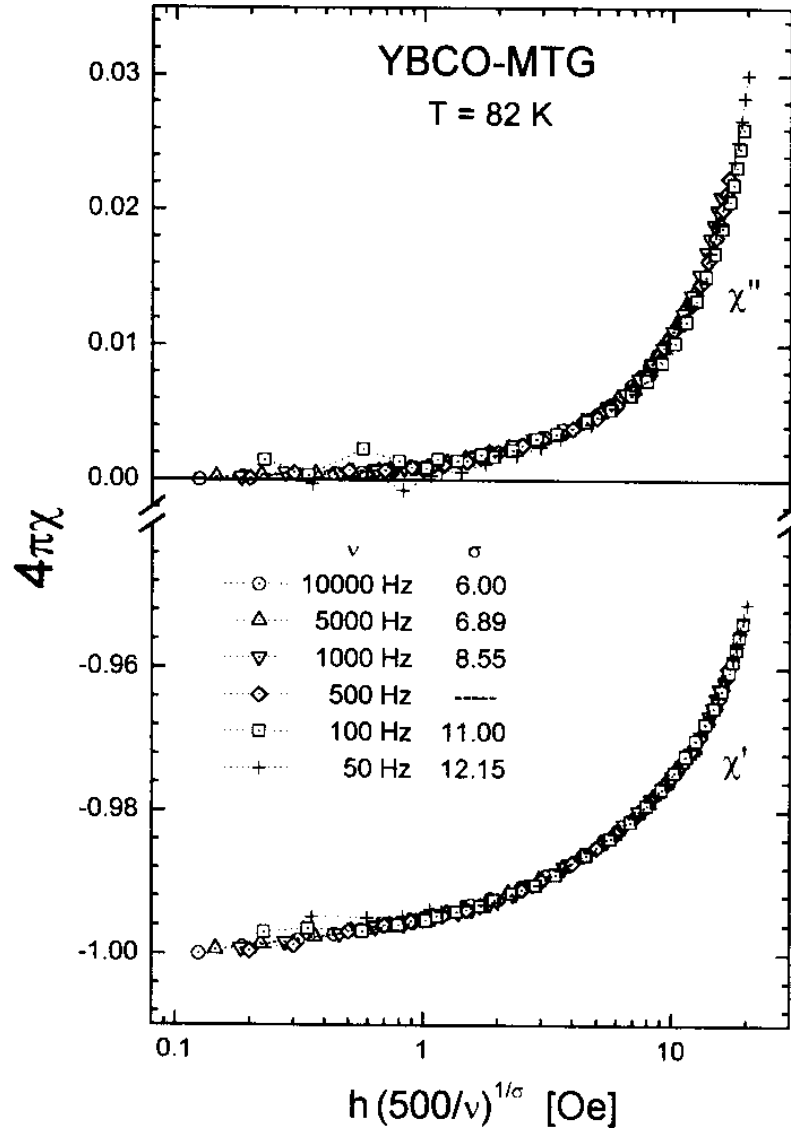


Figura 5.9: Suscetibilidade AC em função da amplitude escalonada, para amostra YBCO-MTG, para $T = 82 \text{ K}$. Observa-se que um excelente colapso das curvas para diferentes frequências pode ser obtido somente se adotarmos um expoente $\sigma(\nu)$ diferente para cada curva, indicando a inconsistência da lei de escala de Brandt neste caso.

efetuar as medidas⁵ (importante notar que para as curvas $\chi \times h_0$ todos os pontos são medidos em sequência, sem pausas entre eles). Além da dissipação de calor devido a movimentação de vórtices, uma possível distribuição de T_c 's na amostra e/ou efeitos de flutuações podem contribuir como processos dissipativos adicionais e, assim, levar ao não escalonamento da componente imaginária.

Os valores obtidos para o expoente σ , neste caso, ficam entre 3 e 8, essencialmente coincidindo com os valores obtidos para as amostras de nióbio. Isso parece indicar que movimentação de vórtices para temperaturas suficientemente próximas de T_c é muito semelhante para todas as três amostras.

5.3.1 Reinterpretando a lei de escala

Como já discutimos anteriormente, a lei de escala de Brandt falha quando aplicada aos dados medidos para a amostra YBCO-MTG. A dependência com a frequência do expoente σ não pode ser facilmente assimilada neste formalismo. Ainda assim, a boa sobreposição de χ' e a coincidência da posição dos picos em χ'' quando tal escalonamento é realizado adotando-se $\sigma(\nu)$, parecem indicar que mesmo no caso da amostra YBCO-MTG existe um comportamento universal das medidas de suscetibilidade AC. Resta-nos entender qual seria a lei de escala por trás dele. Esta é a idéia básica que exploraremos nesta seção.

Até agora utilizamos a lei de escala tal como proposta por Brandt, derivada assumindo uma lei de potência para $E(J)$. Entretanto, ao estudarmos a suscetibilidade magnética para amostras supercondutoras de diferentes geometrias, observamos que a suscetibilidade em todos os casos dependia apenas da razão entre a amplitude do campo excitador e um dado campo característico para cada geometria:

$$\chi \equiv \chi(h/h^*) \quad (5.4)$$

Além disso, no caso de resposta volumétrica, este campo característico apresenta uma forma genérica do tipo

$$h^* \equiv J_c d^* \quad (5.5)$$

onde d^* seria uma dimensão característica da geometria do problema. Assim, para um cilindro

⁵Tal variação foi observada na temperatura medida por um termômetro colocado próximo da amostra. Um segundo termômetro afastado em torno de 5 cm da amostra continuava a ler uma temperatura estável durante toda a medida, reforçando a idéia que era realmente a amostra que estava sendo responsável pelo aumento da temperatura detectado pelo primeiro termômetro.

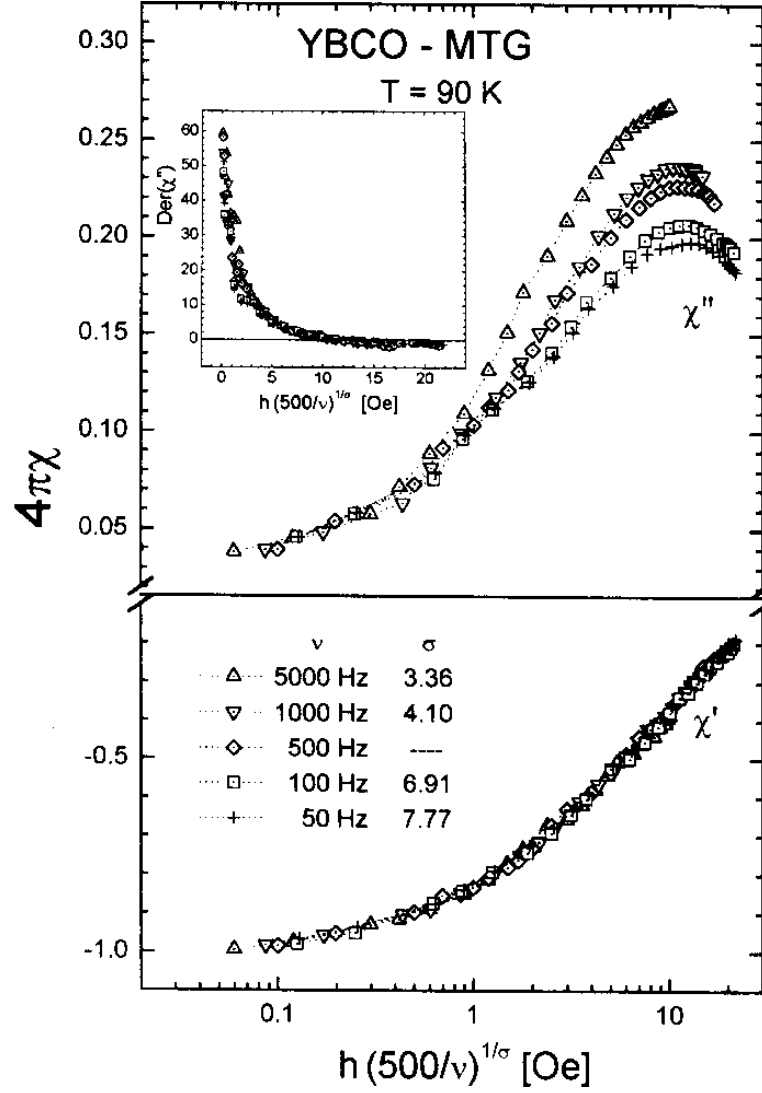


Figura 5.10: Suscetibilidade AC em função da amplitude escalonada, para amostra YBCO-MTG, para $T = 90$ K. Observa-se um bom colapso de χ' para diferentes frequências quando adota-se $\sigma(\nu)$. O inset mostra a derivada da componente imaginária em função da amplitude escalonada, indicando que os picos em χ'' ocorrem para o mesmo valor de \tilde{h} .

infinito de raio d com o campo aplicado axialmente, por exemplo, teríamos⁶ $d^* = (4\pi/c)d$. Desta forma, deveríamos ter a sobreposição de todas as medidas da suscetibilidade para diferentes frequências quando colocadas em função da variável de escala $\tilde{h} = h/(J_c d^*)$. O fator geométrico d^* , entretanto, é um tanto quanto inconveniente em se tratando de amostras reais, onde nem sempre a amostra tem uma forma geométrica simples. Além disso, para cada amostra teríamos de calcular o d^* apropriado para podermos analisar os resultados obtidos. Uma forma mais prática para esta lei de escala seria, como fizemos com a lei de escala de Brandt, normalizá-la utilizando uma medida de referência. Assim teríamos a variável de escala como sendo simplesmente⁷

$$\tilde{h} = h \left(\frac{J_c^{ref}}{J_c} \right) \quad (5.6)$$

Este pode ser um resultado interessante, mas ele resolveria o dilema dos expoentes $\sigma(\nu)$? Já havíamos checado que a resposta magnética das nossas amostras é volumétrica, ao menos dentro do intervalo de temperaturas adotado neste trabalho, e assim esperamos que a lei de escala utilizando a variável de escala 5.6 funcione; por outro lado, pelo menos para as amostras de nióbio, a lei de escala de Brandt pode ser aplicada tranquilamente. Certamente estas duas leis de escala estão relacionadas e é esta relação que deve nos esclarecer o motivo por trás do inesperado resultado que obtivemos para a amostra YBCO-MTG.

A chave para obtermos a relação entre estas variáveis de escala está em considerarmos efeitos de relaxação magnética mais cuidadosamente. Ao fazermos medidas da suscetibilidade AC para diferentes frequências, estamos de fato medindo a resposta da amostra dentro de diferentes intervalos de tempo. Para uma frequência alta, este intervalo de tempo seria pequeno, enquanto no caso de frequências baixas este intervalo pode ser muito maior. Se nós consideramos agora que sempre que temos penetração de campo na amostra há também um processo de relaxação magnética, esta relaxação deve ser mais ou menos relevante conforme o intervalo de tempo envolvido na medida. O modelo de Bean, entretanto, considera perfis fixos de campo na amostra, desconsiderando a influência da relaxação magnética. Precisamos então aperfeiçoar esta descrição fornecida pelo modelo de Bean

⁶ Ou seja, no caso simples de um cilindro infinito com campo aplicado axialmente a dimensão característica nada mais é do que o raio do cilindro. No caso de geometrias mais complexas esta geometria característica pode assumir formas mais complexas. Vale ressaltar ainda que na definição de d^* que adotamos embute todas as constantes numéricas, tanto de origem geométrica como as dadas pelo sistema de unidades.

⁷ O. F. de Lima e C. A. Cardoso, Phys. Rev. B 61 (2000), 11722; C. A. Cardoso e O. F. de Lima, Physica C 354 (2001), 165.

de forma a incluir a relaxação magnética no nosso modelo. Uma forma de inserir no formalismo de estado crítico a movimentação de vórtices consiste em considerar uma corrente crítica efetiva [57]

$$J_c(T, B, \nu) = J_c(T, B)g \left[\frac{kT}{U_c(T, B)} \ln \left(\frac{\nu_0}{\nu} \right) \right], \quad (5.7)$$

onde ν_0 é a uma “attempt frequency” extrínseca, dependente da geometria da amostra. A função $g(y) < 1$ reflete a relaxação do perfil de fluxo magnético na amostra durante o tempo $1/\nu$. Esta função depende da natureza específica do processo de movimentação de fluxo magnético. No modelo de Anderson-Kim [4], onde $U = U_c(T, B)(1 - J/J_c)$, obtêm-se [56, 57]

$$\begin{aligned} g(y) &= 1 - y \\ J_c(T, B, \nu) &= J_c(T, B) \left[1 - \frac{kT}{U_c(T, B)} \ln \left(\frac{\nu_0}{\nu} \right) \right]; \end{aligned} \quad (5.8)$$

Se temos uma dependência altamente não linear da energia de ativação em função da densidade de corrente, $U = U_c(T, B)(J/J_c)^{-\mu}$, tal como previsto no modelo de creep coletivo [59, 16] e de vidro de vórtices [61] então pode-se obter a lei de potência [56, 57]:

$$\begin{aligned} g(y) &= y^{-1/\mu} \\ J_c(T, B, \nu) &= J_c(T, B) \left[\frac{kT}{U_c(T, B)} \ln \left(\frac{\nu_0}{\nu} \right) \right]^{-1/\mu}; \end{aligned} \quad (5.9)$$

onde $\mu > 0$ depende do regime de movimentação de vórtices. Já na aproximação logarítmica de Zeldov [135], $U = U_c(T, B) \ln(J_c/J)$, obtêm-se [56, 57]:

$$\begin{aligned} g(y) &= \exp(-y) \\ J_c(T, B, \nu) &= J_c(T, B) \left(\frac{\nu_0}{\nu} \right)^{-\frac{kT}{U_c(T, B)}} \end{aligned} \quad (5.10)$$

Podemos agora substituir estas diferentes expressões para $J_c(T, B, \nu)$ na variável de escala 5.6 e assim determinar a sua dependência com a frequência. Substituindo a Eq. 5.10 na expressão para a variável de escala, Eq. 5.6, nós recuperamos exatamente o resultado da lei de escala de Brandt, Eq. 5.1. Isso mostra que o cálculo desenvolvido por nós é consistente, já que a Eq. 5.10 vem da escolha da aproximação logarítmica para a energia de ativação, exatamente a mesma hipótese feita por Brandt quando do desenvolvimento dos cálculos que levaram a lei de escala proposta por ele. Frente aos resultados que obtivemos, fica claro que a lei de escala de Brandt não apenas é consistente com o comportamento universal da suscetibilidade AC calculada a partir do modelo de Bean (modificado

para incluir efeitos de relaxação magnética), como pode ser derivada diretamente deste modelo sem a necessidade de nenhuma hipótese adicional. Mais que isso, fica evidente que a lei de escala obtida por Brandt é, na verdade, um caso particular de uma lei de escala mais geral, dada pela Eq. 5.6. De fato, esta lei de escala generalizada pode inclusive ser utilizada para testar experimentalmente qual modelo para a energia de ativação (e, conseqüentemente, qual a dependência da densidade de corrente com a frequência) aplica-se melhor a uma dada amostra para certos valores de campo aplicado e temperatura.

Para comprovar a análise apresentada acima, reanalisamos nossos resultados utilizando esta lei de escala generalizada⁸. Nas figuras 5.11 - 5.16 apresentamos os mesmos resultados experimentais das Figs. 5.4 - 5.10, mas agora em termos da nova lei de escala que estamos propondo [51]. Para realçar ainda mais o bom escalonamento dos dados, adotamos uma apresentação um pouco diferente da adotada nas Figs. 5.4 - 5.10: desta vez apresentamos os gráficos de $4\pi\chi' + 1$ e χ'' na escala logarítmica, o que nos permite identificar mesmo as menores diferenças entre as curvas. Com esta nova apresentação, fica mais claro que para amplitudes abaixo de 3 Oe, onde acreditamos haver a transição do regime linear para uma resposta não linear, realmente a lei de escala não é verificada para as amostras de nióbio. Já para a amostra MTG, que apresenta uma movimentação de vórtices muito mais intensa, o comportamento não linear é observado até amplitudes muito mais baixas.

Com esta generalização da lei de escala de Brandt, o fator de ajuste que faz com que as curvas colapsem em uma única é a densidade de corrente normalizada, $J(\nu)/J(500)$. Desta forma, pudemos determinar a dependência da densidade de corrente com a frequência e compará-la com os diferentes modelos listados anteriormente. O resultado obtido para as amostras de nióbio está representado na figura 5.17. Vemos que tanto para temperaturas baixas (onde temos uma movimentação de vórtices mínima), quanto para temperaturas altas (próximas de T_c , onde a movimentação de vórtices é intensa) obtemos um comportamento linear num gráfico log-log, indicando uma dependência do tipo lei de potência para $J(\nu)$. Este é exatamente o comportamento obtido utilizando a aproximação logarítmica, Eq. 5.10. De fato, as linhas tracejadas na Fig. 5.17 são os ajustes da expressão 5.10 aos dados experimentais. A partir dos coeficientes angulares destas retas determinamos os expoentes de creep n para cada temperatura e para ambas amostras de nióbio obtendo, tal como esperado, os

⁸O escalonamento dos dados é exatamente o mesmo para ambas as formulações da lei de escala. A diferença está apenas no significado do termo, determinado experimentalmente, que multiplica a amplitude do campo excitador.

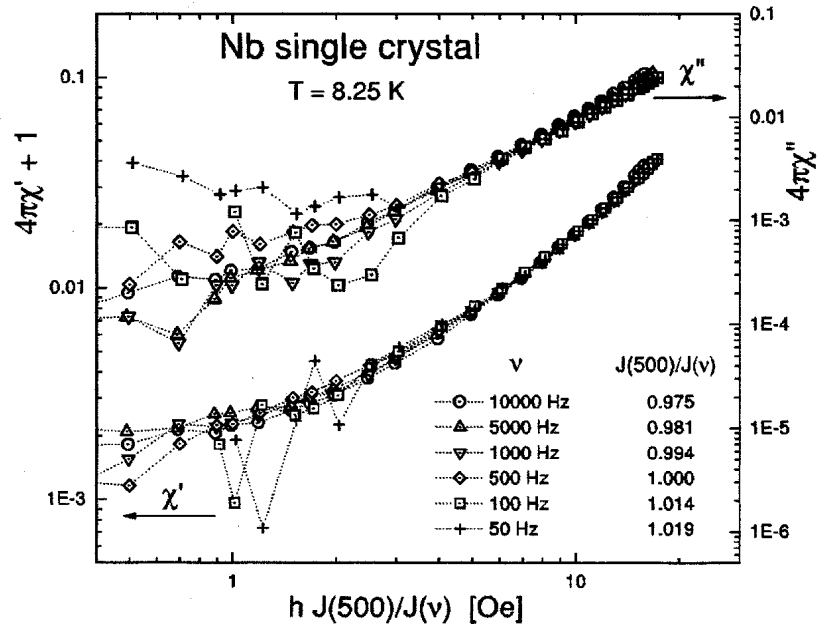


Figura 5.11: Suscetibilidade AC em função da nova variável de escala, para amostra de nióbio monocristalino.

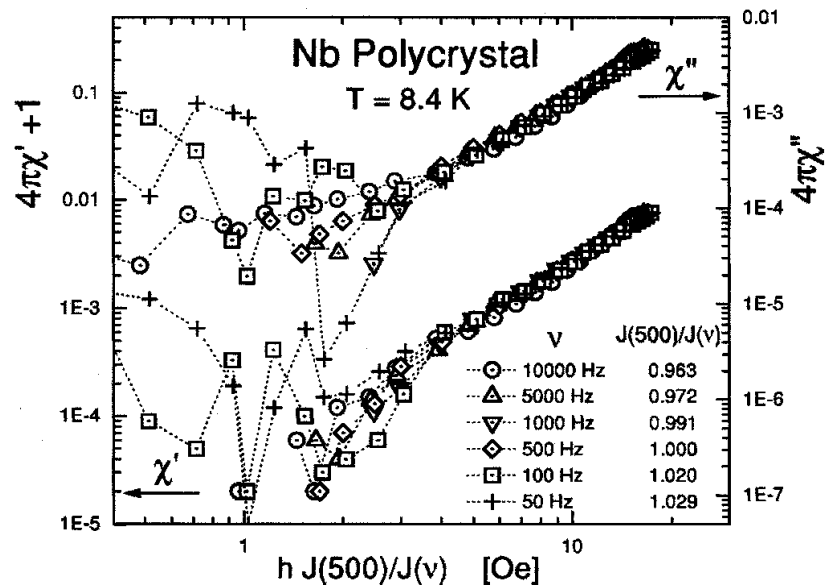


Figura 5.12: Suscetibilidade AC em função da nova variável de escala, para amostra de nióbio policristalino.

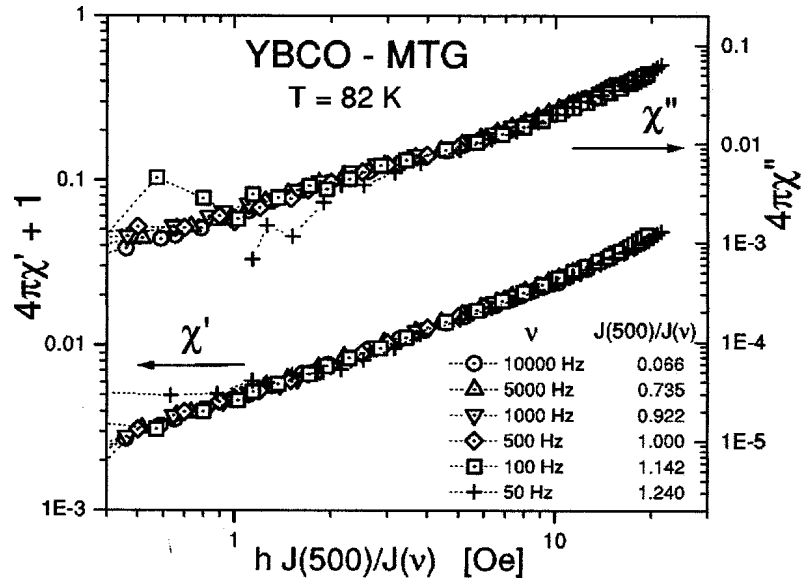


Figura 5.13: Suscetibilidade AC em função da nova variável de escala, para amostra YBCO-MTG.

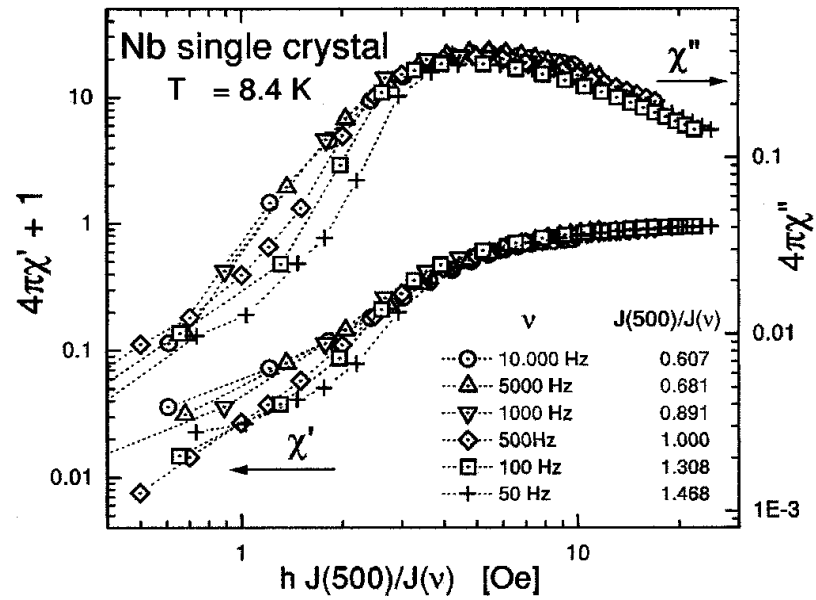


Figura 5.14: Suscetibilidade AC em função da nova variável de escala, para amostra de nióbio monocristalino e $T = 8.4K$.

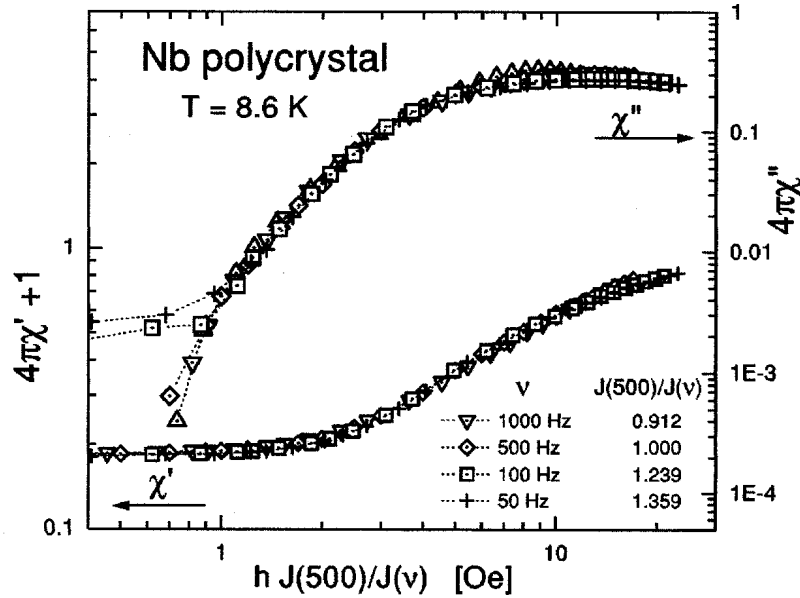


Figura 5.15: Suscetibilidade AC em função da nova variável de escala, para amostra de nióbio policristalino e $T = 8.6$ K.

mesmos valores obtidos anteriormente e apresentados na figura 5.8. A conclusão a que chegamos é bastante simples: a lei de escala de Brandt apresentou um bom resultado para o caso das amostras de nióbio essencialmente porque a hipótese de que a lei de potências, Eq. 4.31, é válida nestes casos.

Quando aplicamos esta mesma lei de escala generalizada para as medidas para a amostra YBCO - MTG, nós obtemos um resultado bastante diferente para $J(\nu)$. Como apresentado na figura 5.18, vemos que ainda que o modelo logarítmico ajuste os dados experimentais de uma forma aproximada, ele não oferece uma descrição detalhada. Já o modelo de “collective creep” se ajusta muito melhor aos dados. Isto nos leva a pensar que a dependência inesperada do expoente σ (e, conseqüentemente, do expoente de creep) deva-se basicamente ao fato de que a Eq. 5.10 não é capaz de descrever adequadamente a dependência da densidade de corrente com a frequência. Assim, teríamos uma “contaminação” espúria do expoente de creep, que passaria a depender da frequência para compensar a falha do modelo. Em palavras mais diretas, o modelo utilizado não era adequado e, portanto, precisa ser substituído. Ainda na Fig. 5.18 apresentamos, em linhas cheias, os resultados a partir do ajuste do modelo de collective creep/vidros de vórtice, ver eq. 5.9, aos dados obtidos da lei de escala. Os parâmetros de ajuste deste modelo são a frequência característica ν_0 e o expoente μ ,

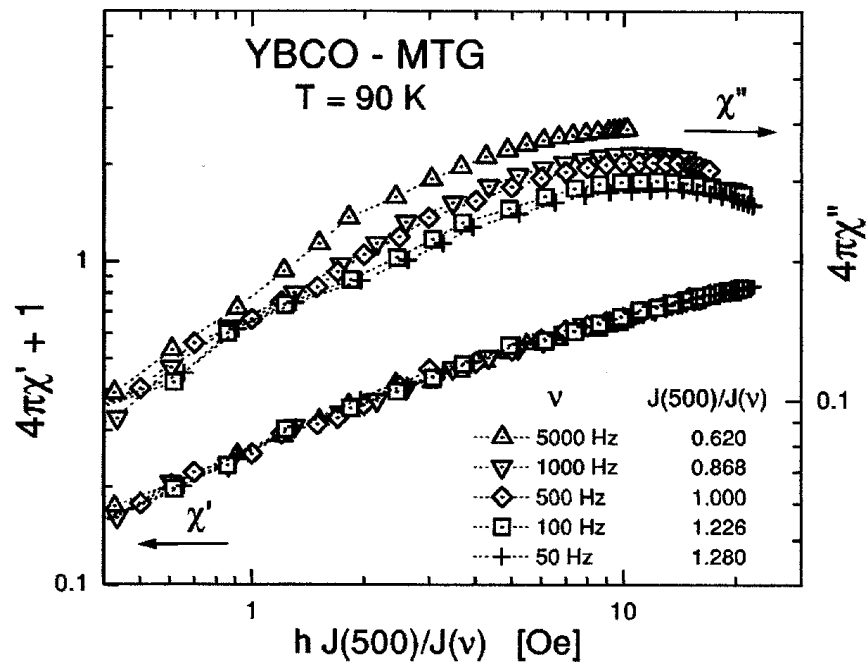


Figura 5.16: Suscetibilidade AC em função da nova variável de escala, para amostra YBCO-MTG e $T = 90$ K.

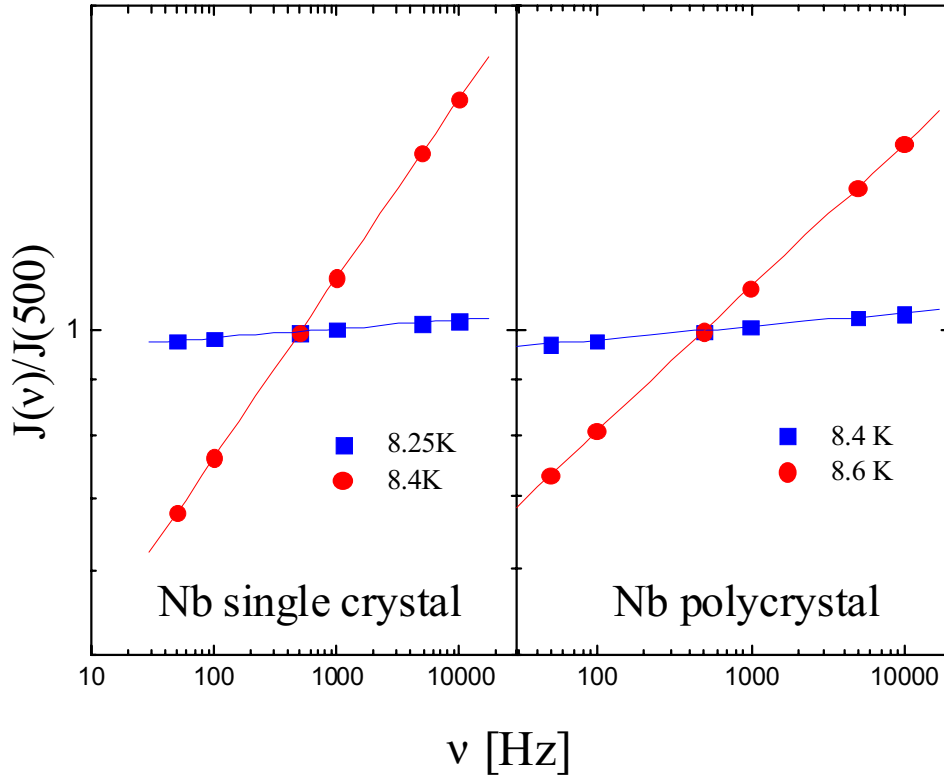


Figura 5.17: Gráfico log-log da densidade de corrente normalizada em função da frequência para ambas amostras de nióbio. As linhas retas são ajustes da expressão 5.10.

este último de particular interesse por indicar qual regime de movimentação de vórtices descreve o comportamento magnético da amostra. Variando estes dois parâmetros obtivemos um ajuste deste modelo muito melhor do que o observado para a aproximação logarítmica. Os valores ótimos obtidos para ambos os parâmetros são apresentados na figura 5.19. Valores para a frequência característica da ordem de $\nu_0 \sim 4 \times 10^5$ Hz corrobora a interpretação de que esta frequência característica é uma quantidade macroscópica e extrínica [59, 1], em oposição à interpretação de ν_0 como sendo uma quantidade intrínica e microscópica [56] (hipótese esta que implica em $\nu_0 \sim 1 \times 10^9$ Hz). Quanto ao expoente μ , uma diminuição monotônica do seu valor em função da temperatura foi reportado anteriormente por Sun *et al.* [123] para amostras de YBCO-MTG. Baseando-nos no modelo de creep

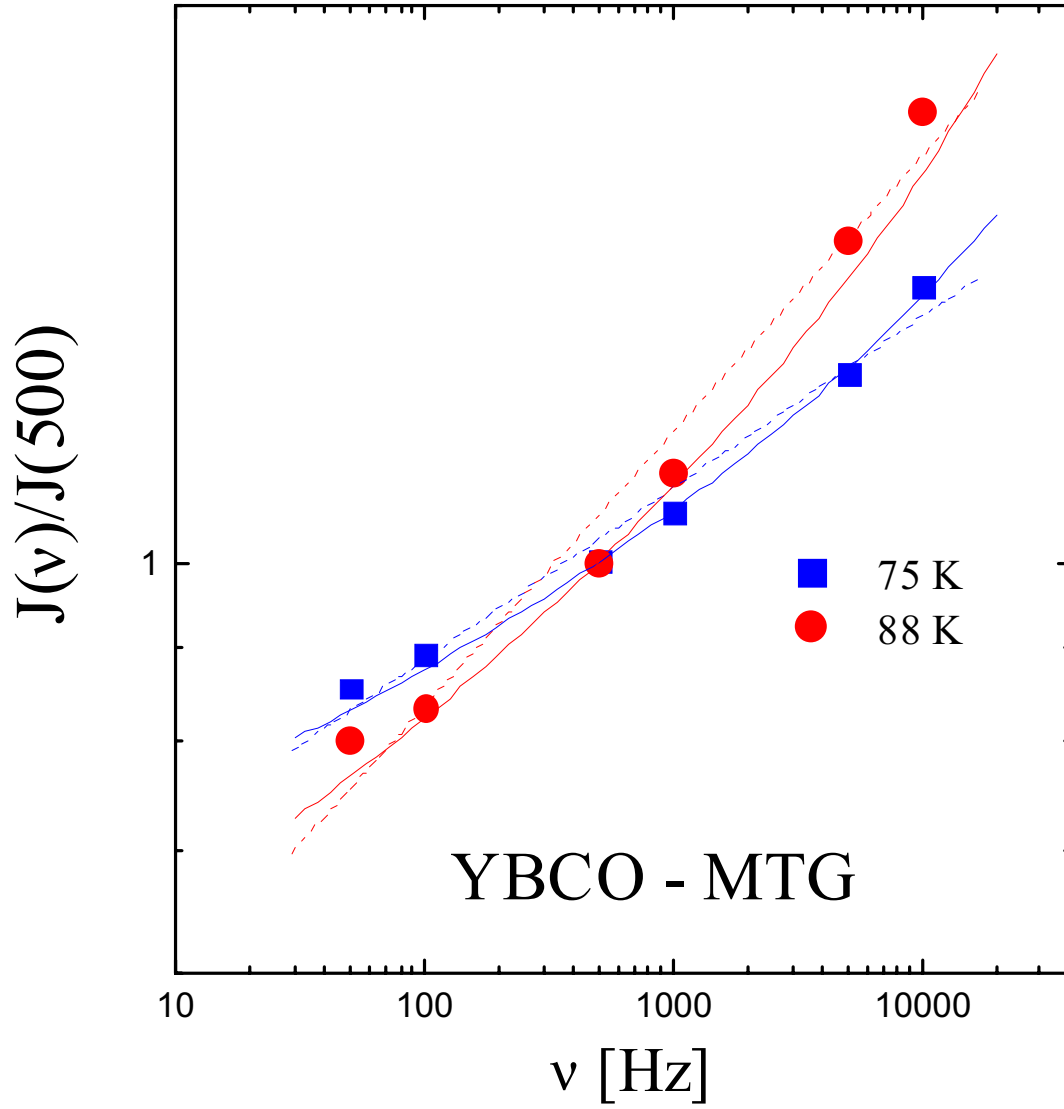


Figura 5.18: Gráfico log-log da densidade de corrente normalizada em função da frequência para a amostra YBCO-MTG. As linhas cheias são ajustes de $J(\nu)$ derivadas a partir da aproximação logarítmica, enquanto as linhas tracejadas são ajustes dos resultados obtidos a partir do modelo de creep coletivo.

coletivo [16], podemos dizer que conforme aumentamos a temperatura de $T \sim 75$ K até $T = 90$ K, o regime de movimentação de vórtices muda de um regime de pequenos pacotes ($\mu = 5/2$), passando por um regime intermediário ($\mu = 1$), até atingir o regime de grandes pacotes ($\mu = 7/9$). Esta análise baseada no modelo de movimentação coletiva de vórtices é muito interessante, mas deve ser olhada com cuidado. De fato, nas medidas de suscetibilidade AC estamos olhando a resposta da amostra em uma janela temporal muito estreita (entre 10^{-2} e 10^{-4} segundos), enquanto o estudo da movimentação coletiva de vórtices baseia-se na relaxação da magnetização durante um longo intervalo de tempo. Nossa análise indica que os resultados obtidos em condições tão distintas sejam compatíveis, mas um estudo mais cuidadoso seria apropriado. De qualquer forma, a possibilidade de se usar medidas de suscetibilidade AC para testar diretamente modelos de dinâmica de vórtices, inclusive podendo distinguir diferentes regimes de movimentação de fluxo, é muito excitante e deve ser explorada.

Resta um último ponto a ser discutido. Nós iniciamos todo este trabalho para desenvolver uma lei de escala generalizada para as medidas de suscetibilidade AC por termos encontrado um expoente σ dependente da frequência, o que não era aceitável. Utilizando este modelo de movimentação coletiva de vórtices, não há mais σ ou n nas nossas equações e tudo parece se encaixar muito bem. Mas, ainda que Brandt tenha adotado a aproximação logarítmica para desenvolver seus cálculos, ele mesmo enfatiza que a lei de escala determinada por ele é válida para qualquer relação corrente-voltagem suficientemente não linear. Desta forma, poderíamos manter a lei de escala de Brandt tal qual apresentada na Eq. 5.1, desde que utilizássemos a forma generalizada para o expoente

$$\sigma_{eff} = \partial \ln(E) / \partial \ln(J) |_{J \rightarrow J_c} - 1 = n_{eff} - 1 \quad (5.11)$$

Veja que este expoente efetivo não é mais relacionado ao expoente de creep n , determinado a partir de curvas I-V, por exemplo. Ele é um expoente ainda correlacionado com a movimentação de vórtices sim, mas que incorpora também outras dependências que vão fazer com que a lei de escala acabe assumindo uma forma mais próxima da realidade experimental. Em outras palavras, ao fazer esta generalização nós estamos fazendo um raciocínio do tipo: “A lei de potências não é válida, mas qual seria o expoente de creep efetivo que eu obteria se eu *forçasse* os resultados experimentais a se encaixarem numa lei de potência? A consequência seria surgir um expoente dependente da frequência, de forma a compensar o fato de que \tilde{h} tem, na verdade, uma dependência com a frequência mais complexa do que uma simples lei de potências.”

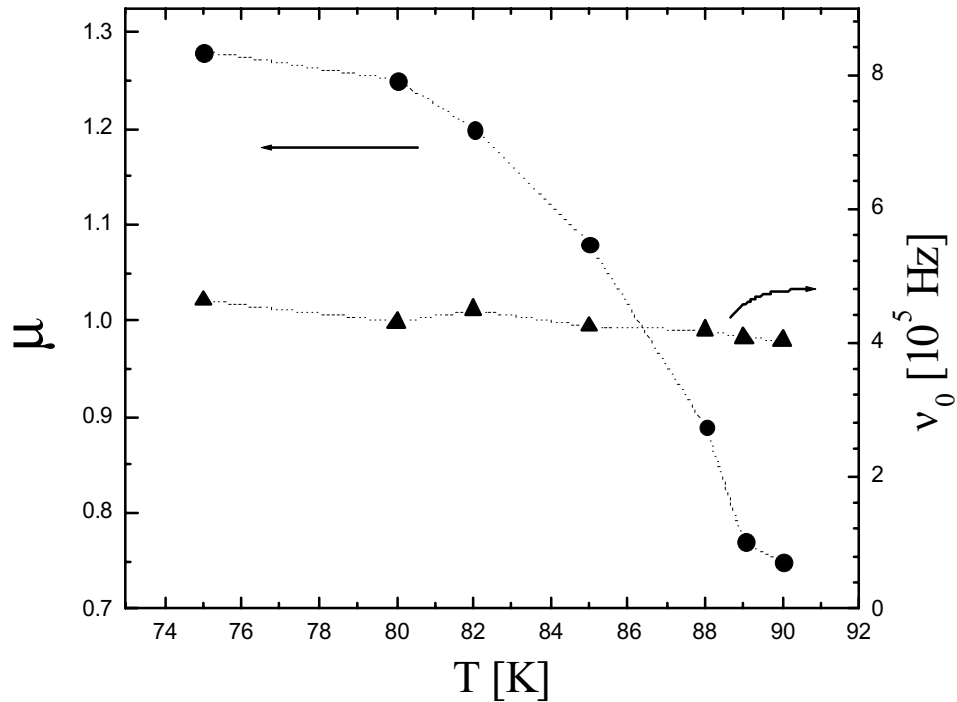


Figura 5.19: Parâmetros obtidos do ajuste das expressões de movimentação coletiva de vórtices à dependência de J com a frequência, obtida a partir da lei de escala.

Neste caso, a lei de escala tem de ser reformulada de acordo com a relação específica a ser utilizada, o que implica no cálculo do expoente efetivo $n_{eff} = \partial \ln E / \partial \ln J$. Observe que para a aproximação logarítmica temos $n_{eff} = n$ e neste, e somente neste caso, a lei de escala forneceria realmente o expoente de creep n . Se nós agora substituirmos a energia de ativação $U = U_c(T, B)(J/J_c)^{-\mu}$ (do modelo de creep coletivo) na expressão de Arrhenius para o campo elétrico gerado pela movimentação termicamente ativada de vórtices

$$E(J) = E_c \exp\left(-\frac{U(J)}{kT}\right) \quad (5.12)$$

obtemos

$$E(J) = E_c \exp\left(-\frac{U_c(T, B)(J/J_c)^{-\mu}}{kT}\right) \quad (5.13)$$

e assim n_{eff} seria simplesmente

$$n_{eff} = \mu \frac{U_c}{kT} \left(\frac{J}{J_c} \right)^{-\mu} = \mu \ln \left(\frac{\nu_0}{\nu} \right) \quad (5.14)$$

onde no último passo utilizamos a relação 5.9. Assim, ao forçarmos os dados experimentais “redondos” a entrar no “encaixe quadrado” da lei de escala de Brandt, acabamos por obter um expoente efetivo relacionado com o regime de movimentação de vórtices (via o valor de μ), juntamente com uma dependência logarítmica com a frequência. Para ver se nosso raciocínio é consistente com os resultados experimentais, colocamos na figura 5.20 os valores de n_{eff} calculados a partir do modelo de creep coletivo e da aproximação logarítmica de Zeldov, e os comparamos com os resultados obtidos experimentalmente.

Vemos assim que os resultados obtidos usando o modelo de creep coletivo retraçam bastante bem a dependência com a frequência observada experimentalmente, reforçando a conclusão que os resultados obtidos para a amostra YBCO-MTG seguem o modelo de movimentação coletiva de vórtices. Já o resultado do cálculo a partir do modelo de Zeldov não apresenta qualquer dependência com a frequência e os valores obtidos para n_{eff} neste caso são como uma “média” dos valores calculados, para diferentes frequências, a partir do modelo de creep coletivo.

Em resumo, determinamos uma forma de generalizar a lei de escala de Brandt de forma a evitar a necessidade de escolher ad hoc uma forma para a energia de ativação. Ao invés disso, da própria aplicação da lei de escala generalizada é possível verificar qual modelo é mais apropriado para descrever os resultados obtidos e permitindo, assim, a determinação dos parâmetros relevantes para cada modelo. Acreditamos que o fato das amostras de nióbio seguirem a aproximação logarítmica, enquanto a amostra YBCO-MTG reflete o fato da dinâmica de vórtices ser muito diferente entre estas amostras. Não apenas estamos passando de supercondutores clássicos para outro de alta temperatura crítica, como a própria natureza granular da amostra MTG, com grãos acoplados entre si por junções Josephson, deve ter um papel central nesta diferenciação. De fato, como veremos a seguir, a amostra monocristalina de Er:123 (outro supercondutor de alta T_c) também pode ser modelado muito bem pela aproximação logarítmica, reforçando a idéia da importância da microestrutura da amostra na determinação do melhor modelo a ser adotado para a energia de ativação.

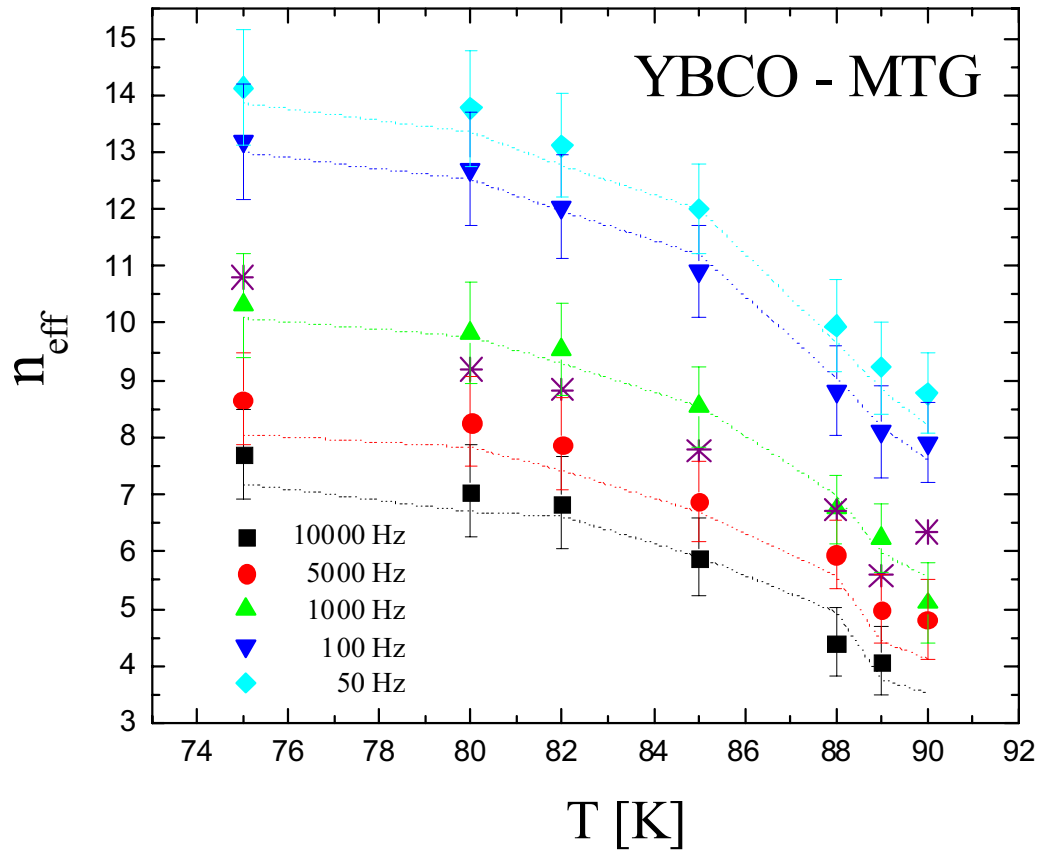


Figura 5.20: Gráfico do expoente efetivo n_{eff} em função da temperatura, para amostra YBCO-MTG. Os pontos coloridos são os valores obtidos do escalonamento das medidas de χ' para as diferentes frequências e temperaturas. As linhas tracejadas indicam os valores obtidos utilizando o modelo de movimentação coletiva de vórtices (utilizando os parâmetros apresentados na Fig. 5.19), enquanto os asteriscos representam os valores obtidos a partir da aproximação logarítmica.

5.4 Amostra de Er : 123

Até aqui havíamos estudado a lei de escala para medidas de suscetibilidade em 3 amostras representativas de “categorias” diferentes de materiais supercondutores: supercondutores clássicos mono e policristalinos (amostras de Nb) e de alta temperatura crítica policristalino (YBCO-MTG). Para complementar estes resultados, estudamos então uma amostra monocristalina de $ErBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, um supercondutor de alta T_c monocristalino. Entretanto, ao invés de simplesmente repetir o que já havia sido feito anteriormente para as outras amostras, decidimos testar a utilização da lei de escala como ferramenta para o estudo de outros fenômenos de interesse. A amostra escolhida para este estudo, em particular, apresenta algumas características interessantes. Trata-se de um material muito pouco estudado (particularmente na forma monocristalina), especialmente quando o assunto é a influência de íons magnéticos (de érbio) na dinâmica de vórtices. A amostra utilizada neste estudo é um monocristal de dimensões $1.4 \times 0.3 \times 0.01 \text{ mm}^3$, crescida em nosso laboratório⁹ pelo tradicional método de crescimento em auto-fluxo em cadinho de zircônia estabilizada com Y. Nesta parte do trabalho focaremos, além da análise da lei de escala, no surgimento do “segundo pico da magnetização” (SPM), também conhecido como “fishtail effect”, bastante intenso neste material. Antes de entrar nos resultados obtidos a partir da lei de escala, vamos fazer então uma pequena digressão sobre o SPM. Após esta rápida revisão, voltaremos à discussão dos resultados da aplicação da lei de escala neste material e a influência do SPM nestes resultados.

5.4.1 Segundo pico na magnetização: idéias básicas e discussão.

Uma grandeza importante no estudo de materiais supercondutores é a sua densidade de corrente crítica. O conhecimento detalhado da sua dependência com o campo magnético, temperatura, etc, é essencial tanto no estudo de propriedades supercondutoras básicas do material, como em qualquer aplicação tecnológica. Medidas diretas da corrente crítica, entretanto, requerem a colocação de contatos na amostra, processo este delicado (particularmente quando queremos estudar um cristal muito pequeno e frágil) e que, essencialmente, inutiliza a amostra para outros tipos de estudo. Para contornar tais dificuldades, lança-se mão com frequência de medidas indutivas que permitem a determinação indireta da densidade de corrente. O método mais usual utiliza medidas $M \times H$, já que a largura ΔM da curva de histerese é proporcional à corrente crítica [134]. Um problema

⁹Esta amostra foi crescida pelos meus colegas Raquel A. Ribeiro e Marcos A. Avila.

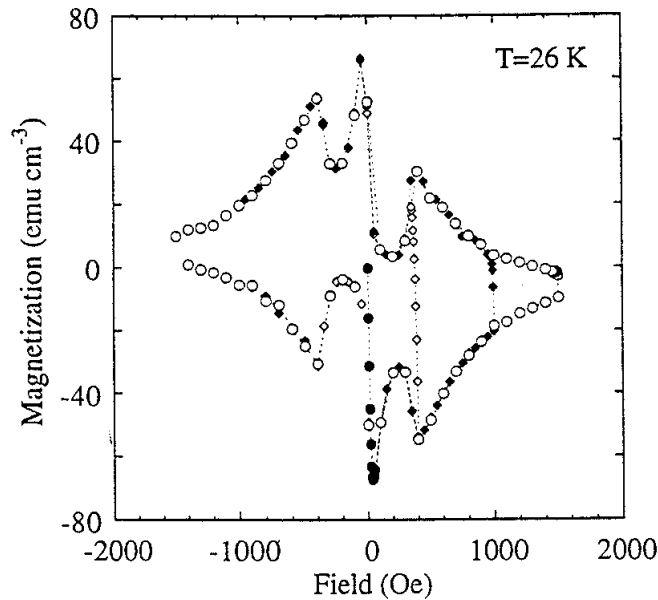


Figura 5.21: Curva de histerese para uma amostra de Bi-Sr-Ca-Cu-O, apresentando o *fishtail effect*. Extraído da Ref. [132].

frequentemente evocado nestes trabalhos é a influência da relaxação magnética durante a medida. Os valores assim obtidos para a densidade de corrente não seriam o valor real da densidade de corrente crítica, mas sim o valor relativo a um perfil de campo que já sofreu alguma relaxação.

Usualmente a densidade de corrente crítica diminui com o aumento do campo magnético aplicado, fazendo com que a curva de histerese se “estreite” com o aumento de H (ΔM diminui juntamente com J_c). Entretanto, em muitos casos há um aumento anômalo de ΔM para campos intermediários, como pode ser visto na figura 5.21. Este efeito é conhecido como segundo pico da magnetização, pico anômalo, “peak effect” ou ainda *fishtail* ou *arrow-head effect* (em referência à aparência das curvas de histerese) [83, 88, 112, 132]. Apesar de ter sido relatado em supercondutores de alta T_c desde 1990 [49] e de ser conhecido em supercondutores clássicos há ainda mais tempo [15], sua origem é ainda assunto de debate. Podemos separar as explicações propostas para a origem do segundo pico da magnetização (SPM) em duas grandes categorias: explicações dinâmicas e estáticas. Ambas categorias possuem um vasto conjunto de resultados experimentais e teóricos que suportam seus argumentos, mas nenhuma delas é capaz de descrever satisfatoriamente todos os resultados experimentais. De fato, há uma variedade tão grande de SPM com características diferentes (tais

como formato da curva de histerese, dependência com a temperatura, região do diagrama $B \times T$ onde aparece o SPM, entre outros; ver, por exemplo, Refs. [83, 88, 112, 132]), que parece muito razoável haver diversos possíveis efeitos que levem, independentemente, ao aparecimento do SPM.

As explicações estáticas assumem que o aumento em ΔM reflete um aumento em J_c . O aumento em J_c , por sua vez, estaria intrinsicamente relacionado com a dependência com o campo aplicado da força de aprisionamento $F_p(B)$. Propostas nesta linha incluem aumento no aprisionamento dos vórtices devido a impurezas ou regiões com H_{c2} menor que agiriam como centros de aprisionamento a campos mais altos [49, 126], granularidade induzida pelo campo aplicado [49, 109], e transição entre diferentes mecanismos de aprisionamento [84]. Embutida em muitas destas hipóteses está a idéia de inomogeneidade da amostra. O efeito de inomogeneidades macroscópicas na determinação de \bar{J}_c , podendo levar ao aparecimento do SPM, foi recentemente tratado teoricamente por Gurevich e Vinokur [72].

Já as explicações dinâmicas defendem que a origem do segundo pico está relacionada com a dinâmica dos vórtices no material. Neste caso, não há qualquer pico em J_c . O SPM surge de uma relaxação magnética diferente para diferentes campos aplicados, e assim teríamos um pico em $J(t)$ e não em J_c . Em geral considera-se que o SPM aparece na transição entre diferentes regimes de movimentação de vórtices, como entre aprisionamento individual dos vórtices e aprisionamento coletivo [92, 132] ou de um regime de movimentação de vórtices elástico para um plástico [2]. Influência de instabilidades térmicas e efeitos de avalanche de fluxo também entrariam nesta categoria [55, 90].

Além de haver *fishtail effects* com características diferentes, as explicações propostas muitas vezes são semelhantes e se confundem, o que dificulta sobremaneira a discussão do efeito. Mudanças na força de aprisionamento também vão se refletir na relaxação magnética, por exemplo. Uma transição na eficiência ou natureza da força de aprisionamento pode significar uma mudança no regime de creep também. Distinguir entre as diferentes alternativas exige uma discussão cuidadosa e dificilmente permite extrapolar para um supercondutor qualquer os resultados obtidos para um dado material. É preciso achar uma clara assinatura de uma transição na dinâmica de vórtices, ou fazer medidas $M \times H$ em um tempo $t \rightarrow 0$ (e assim eliminar efeitos de relaxação magnética), ou ainda fazer medidas para diferentes tamanhos de amostra (para verificar influência de inomogeneidades e/ou avalanches de vórtices). Como fazer medidas de magnetização em tempos muito curtos não é trivial, partiremos para explorar uma possível dependência do SPM com as dimensões da amostra.

Das possíveis explicações para o surgimento do SPM, pelo menos duas delas prevêm que mudanças nas dimensões da amostra afetariam o desenvolvimento deste segundo pico. A primeira delas é a influência de inomogeneidades macroscópicas na determinação da resposta eletromagnética global da amostra, estudada recentemente por Gurevich e Vinokur [72]. Ao contrário de outros modelos que tratam de inomogeneidades microscópicas, cuja principal influência seria sua atuação como centros de aprisionamento de vórtices, neste caso considera-se que entre diferentes regiões macroscópicas da amostra ocorrem flutuações de características também macroscópicas do material (tais como J_c ou T_c). No caso da densidade de corrente crítica, por exemplo, Gurevich e Vinokur mostraram que, ainda que em cada ponto da amostra J_c decresça monotonicamente com o aumento do campo aplicado, ao se fazer a média de J_c em toda a amostra podemos obter uma dependência não-monotônica para \overline{J}_c . Tal resultado pode ser obtido mesmo para inomogeneidades bastante modestas para uma resposta eletrodinâmica fortemente não linear, desde que a condição [72]

$$n_{eff}^{-3/2} = \left(\frac{\partial \ln E}{\partial \ln J} \right)^{-3/2} \ll \langle \delta J_0^2 \rangle / J_0^2 \ll 1$$

seja verificada. Nesta expressão $\langle \delta J_0^2 \rangle$ é a variância das flutuações de $J_0 = J(E_0)$, definida pelo campo elétrico médio E_0 . De fato, os autores concluem que a não linearidade de $J(E)$ acaba potencializando a influência das inomogeneidades na determinação de \overline{J}_c .

Como estas inomogeneidades devem apresentar uma dimensão característica, devemos ter uma dimensão mínima abaixo da qual a amostra pode ser tratada como sendo homogênea. Podemos então, a princípio, quebrar nossa amostra original de tal forma que cada um de seus pedaços possa ser considerado como uma amostra homogênea e assim o SPM deveria desaparecer.

Já a segunda explicação dependente das dimensões da amostra baseia-se na influência das instabilidades termomagnéticas na resposta magnética do supercondutor. Basicamente, o conceito de instabilidades termomagnéticas tem origem no fato de sempre que temos movimentação de vórtices num material supercondutor temos também dissipação de energia, o que leva a um aumento local da temperatura. Se a densidade de corrente crítica J diminui com a temperatura, esta variação local da temperatura leva a um rearranjo dos vórtices que, ao se moverem, dissipam ainda mais energia realimentando o processo. Se o tempo de difusão magnética é muito menor que o tempo de difusão térmica, temos então um aquecimento adiabático do supercondutor já que não há uma remoção ou redistribuição do calor rápida o suficiente para compensar o calor gerado pelo vórtices. Este seria então um fenômeno catastrófico que levaria ao surgimento de avalanches de vórtices. A influência

destas variações locais da temperatura nas medidas de magnetização dependeria assim de uma série de fatores, como a razão entre as difusividades térmica ($\propto \kappa/C$, κ sendo a condutividade térmica e C o calor específico) e magnética ($\propto \rho_{ff}$, a resistividade de movimentação de fluxo), o acoplamento térmico da amostra com o ambiente, a geometria da amostra, etc.

Um ponto importante aqui está no fato de termos um valor crítico para uma dimensão efetiva da amostra abaixo da qual não devemos ter avalanches de fluxo que, segundo o trabalho de Swartz e Bean[124] seria

$$s_{crit} = \left(-\frac{100\pi C}{16J_c \partial J_c / \partial T} \right)^{1/2}$$

onde C é o calor específico. Para o caso de uma amostra retangular fina, com o campo magnético aplicado perpendicularmente a sua maior superfície, pode-se aproximar a dimensão efetiva como sendo

$$s \sim \left(\frac{wd}{2} \right)^{1/2}$$

onde d é a espessura da amostra e w é sua largura. Desta forma, conforme reduzimos as dimensões da amostra, estamos reduzindo a intensidade destas avalanches de fluxo até que as mesmas são completamente suprimidas.

Recentemente Esquinazi *et al.* [55] e Kopelevich e Esquinazi [89] analisaram a ocorrência de avalanches de vórtices para filmes de nióbio e observaram que tais avalanches ocorrem apenas para campos magnéticos entre H_{c1} e H_{SPM} , onde H_{SPM} é o campo onde ocorre o SPM. Mais que isso, ao reduzir as dimensões dos filmes via corrosão química, por exemplo, ambos avalanches e SPM desapareciam. Os autores então argumentam que o SPM surgiria então da redução acentuada da magnetização para campos magnéticos $H_{c1} < H < H_{SPM}$ devido a essas avalanches de vórtices. Argumenta-se ainda que a rápida relaxação magnética nos supercondutores de alta temperatura crítica (HTSC) poderia mascarar a ocorrência de tais saltos na magnetização. Assim, a região $H_{c1} < H < H_{SPM}$ que para filmes de nióbio apresenta muitos saltos na magnetização, para cristais de Bi2212 (por exemplo) poderia apresentar uma curva suave.

5.4.2 Lei de escala e SPM

Na figura 5.22 apresentamos curvas $M \times H_{dc}$ para duas temperaturas diferentes. Destaca-se nestas medidas a presença do SPM à 0.5 T para $T = 80$ K e ~ 1.2 T para $T = 70$ K. Vemos que com a redução da temperatura, o SPM desloca-se para campos maiores, comportamento que acompanhamos até

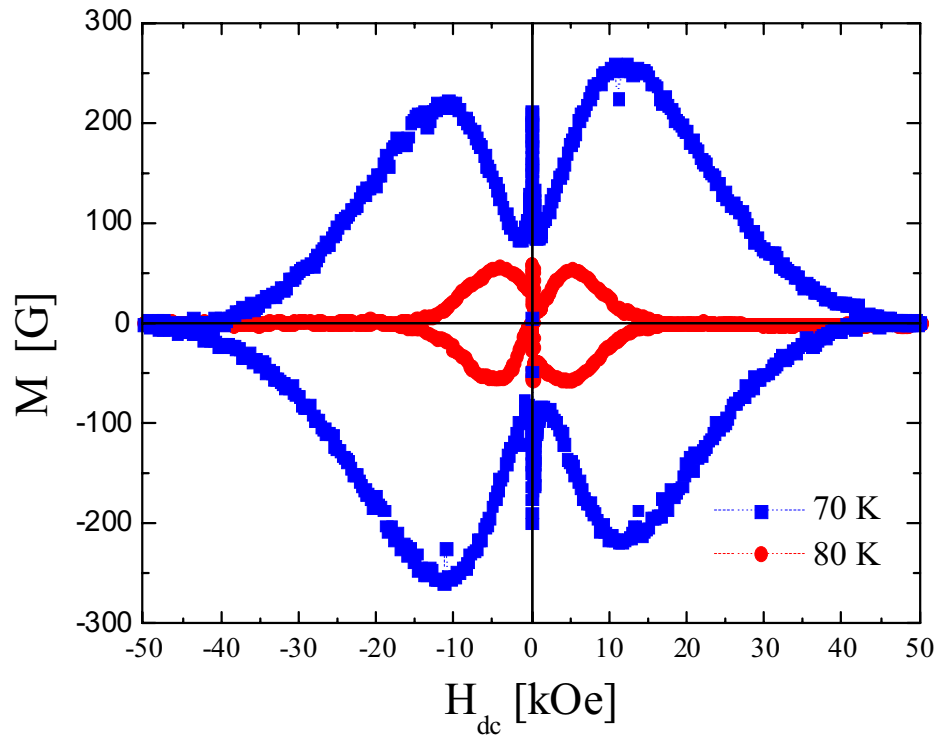


Figura 5.22: Curvas de histerese para amostra de ER:123 a 70 e 80 K, apresentando um claro SPM.

$T = 40$ K. Para temperaturas ainda menores o SPM torna-se tão largo e posicionado a campos tão altos que já não é possível mais traçá-lo completamente utilizando campos aplicados $H_{dc} \leq 5T$, que é o campo máximo do nosso magneto.

Para tentarmos entender o que está por trás do surgimento deste segundo pico, realizamos um grande número de medidas¹⁰ de suscetibilidade AC em função da amplitude para diferentes campos estáticos $0 < H_{dc} < 3T$, para ambas temperaturas de 70 e 80 K. Aplicando a lei de escala generalizada a este conjunto de medidas, esperávamos poder verificar, por exemplo, se haveria alguma mudança na resposta da amostra conforme aumentávamos H_{dc} . Alguns resultados representativos obtidos desta análise estão apresentado nas figuras 5.23 - 5.25, todas realizadas para $T = 80$ K. São apresentados

¹⁰C. A. Cardoso, M. A. Avila, R. A. Ribeiro, O. F. de Lima, Physica C 341-348 (2000), 1291; Physica C 354 (2001), 165.

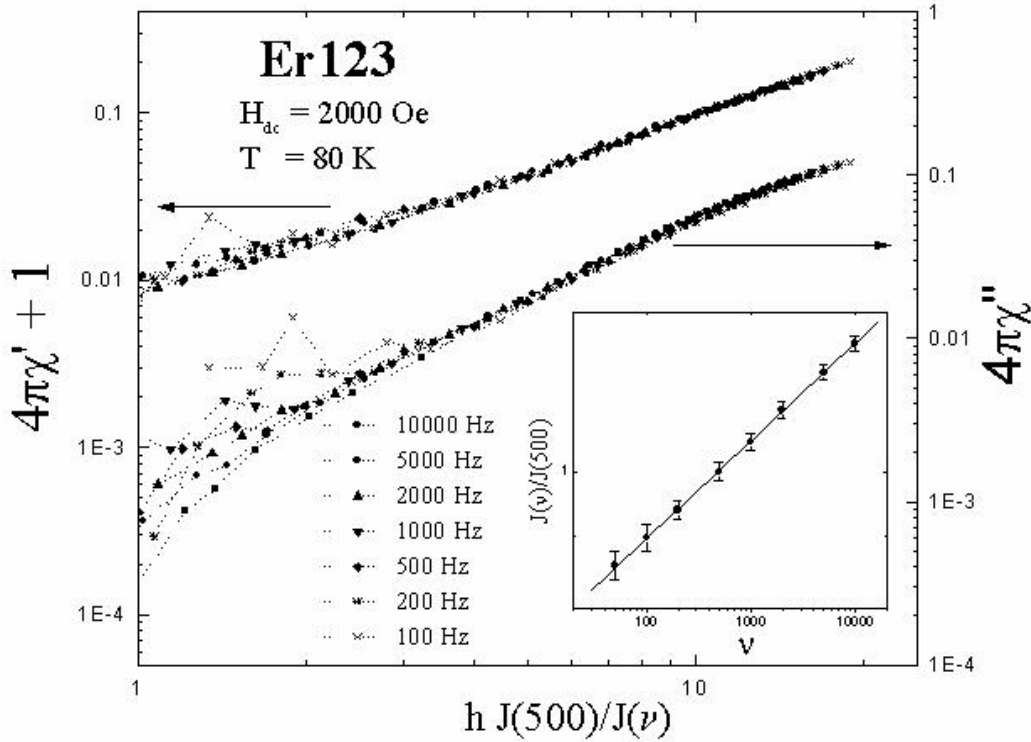


Figura 5.23: Medidas da suscetibilidade AC para diferentes frequências em função da variável de escala, para $H_{dc} = 2000$ Oe. Inset: gráfico log-log de $J(\nu)/J(500)$ em função da frequência. A linha sólida é o ajuste da Eq. 5.10, indicando a boa concordância dos dados com este modelo.

assim resultados obtidos para campos aplicados abaixo (fig. 5.23), acima (fig. 5.25) e coincidente (fig. 5.24) com a posição do SPM.

Confirmamos então a excelente sobreposição de todas as curvas experimentais em uma única curva, em todos os 3 conjuntos de dados. A presença do SPM não trouxe, portanto, qualquer influência na região de validade da lei de escala. Para amplitudes mais baixas, observamos que o escalonamento das curvas fica cada vez mais precário. Dois fatores contribuem para tal resultado. Em primeiro lugar, para amplitudes muito baixas nós começamos a sair do regime não-linear, e assim não esperaríamos realmente a verificação da lei de escala nesta região. Um segundo fator é a deterioração da razão sinal-ruído para baixas amplitudes. Esta razão é particularmente importante para as medidas de χ'' e para medidas a campos mais elevados, que apresentam naturalmente um

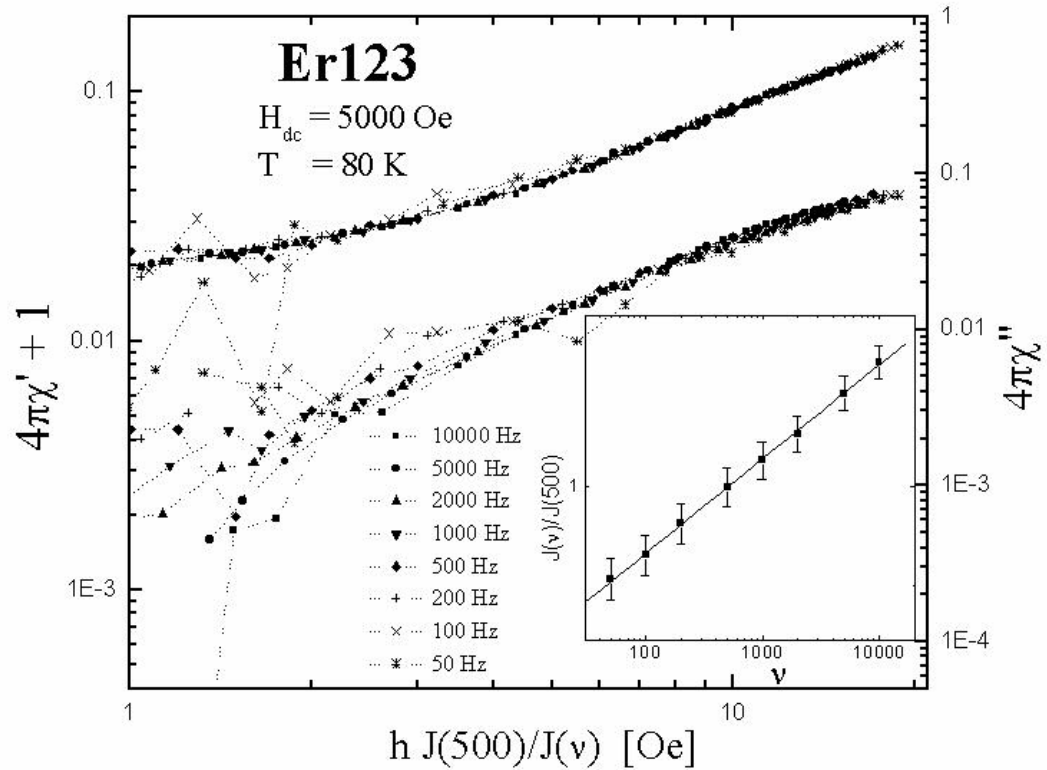


Figura 5.24: Medidas da suscetibilidade AC para diferentes frequências em função da variável de escala, para $H_{dc} = 5000 \text{ Oe}$. Inset: gráfico log-log de $J(\nu)/J(500)$ em função da frequência. A linha sólida é o ajuste da Eq. 5.10.

sinal bastante pequeno. A questão da razão sinal-ruído é mais crítica no caso da amostra Er:123 do que nas amostras anteriormente estudadas dado que esta amostra é muito menor que as demais, apresentando um sinal mais de uma ordem de grandeza menor. Apresentamos nos detalhes das figuras 5.23-5.25 os valores da densidade normalizada da corrente crítica, $J(\nu)/J(500)$, obtidos da lei de escala para cada frequência. Observa-se que $\log(J(\nu))$ varia linearmente com o logaritmo da frequência, o que implica em $J(\nu) = J_0(\nu/\nu_0)^{1/n}$. Esta é a relação decorrente da aproximação logarítmica de Zeldov. Valendo a aproximação de Zeldov, vale também a lei de escala original de Brandt e obtêm-se um único valor para n (independente da frequência), através do coeficiente angular do ajuste linear apresentado nos insets das figs. 5.23-5.25. Este resultado contrasta com o obtido para a amostra YBCO-MTG (discutida anteriormente) para a qual tal aproximação não era

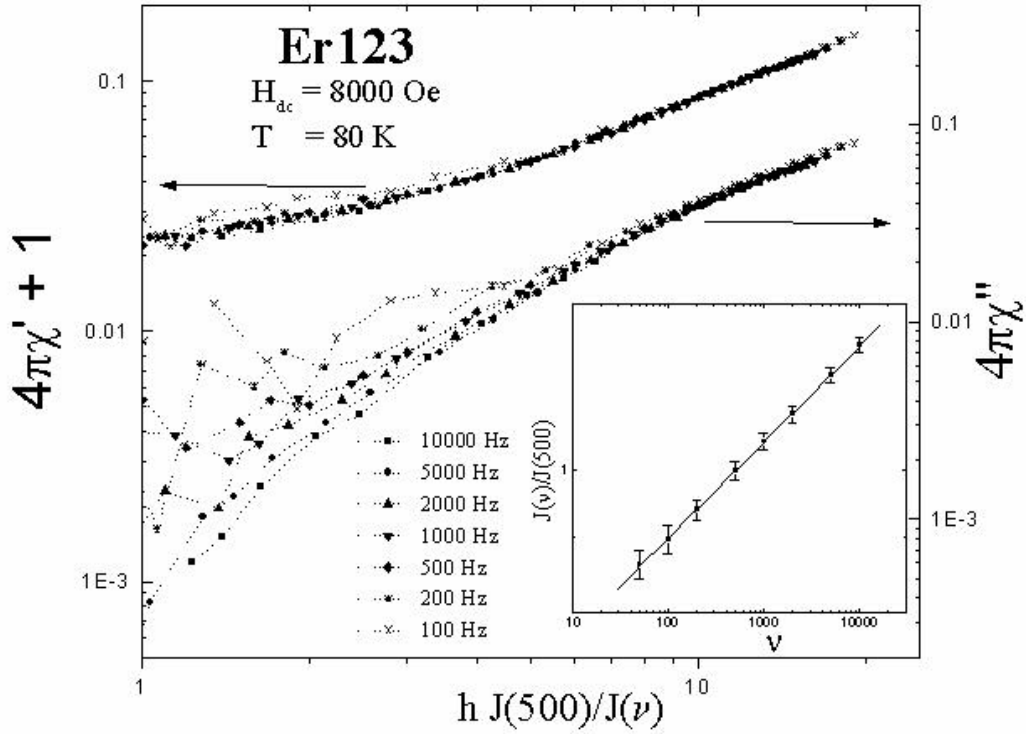


Figura 5.25: Medidas da suscetibilidade AC para diferentes frequências em função da variável de escala, para $H_{dc} = 8000 \text{ Oe}$. Inset: gráfico log-log de $J(\nu)/J(500)$ em função da frequência. A linha sólida é o ajuste da Eq. 5.10.

válida, confirmando nossa afirmação anterior de que o comportamento observado para a amostra YBCO-MTG está relacionado não apenas com sua alta temperatura crítica, mas também com sua microestrutura.

Uma vez que comprovamos a validade da aproximação logarítmica é possível, através da análise da aplicação da lei de escala, obter o expoente de creep n . Os resultados obtidos para o expoente de creep em função do campo aplicado para ambas as temperaturas utilizadas ($T = 80 \text{ K}$ e $T = 70 \text{ K}$) são apresentados na figura 5.26. Para campos abaixo do SPM, o expoente de creep n depende fracamente com a temperatura e cresce quase linearmente com o aumento do campo aplicado. Após passar por um valor máximo exatamente no campo onde ocorre o SPM nas curvas de histerese, temos o decréscimo de n com o aumento tanto do campo magnético aplicado, quanto com a temperatura.

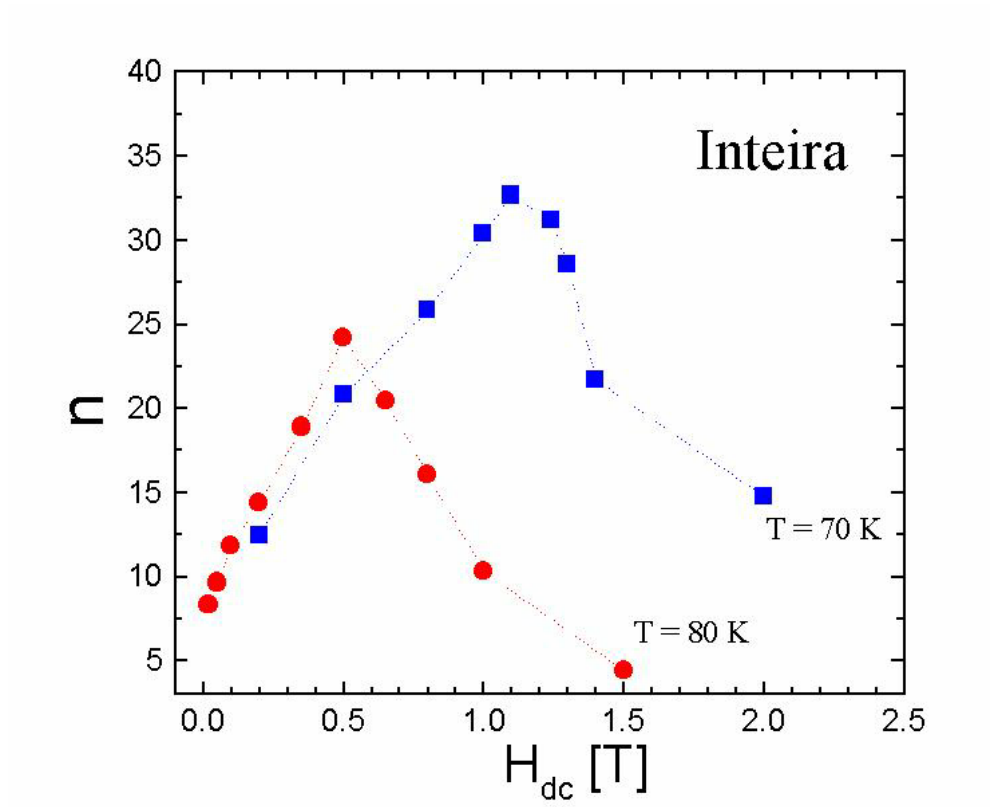


Figura 5.26: Expoente de creep n em função do campo magnético estático H_{dc} para $T = 70$ e 80 K . Podemos observar uma clara correlação entre o expoente de creep e o SPM (ver também Fig. 5.22).

O expoente n é uma medida da intensidade da movimentação de vórtices no material: quanto maior o valor de n tanto menos intensa é a movimentação dos vórtices. O aumento de n na região onde observa-se o SPM é uma clara indicação de que para estes valores de campo a relaxação magnética é mais lenta do que para campos afastados do SPM. Ainda que esta informação por si só não nos permita excluir uma possível origem “estática” (não baseada exclusivamente na relaxação magnética), ela é uma indicação de que há realmente uma contribuição dinâmica na formação do SPM neste caso.

Os resultados que obtivemos com a lei de escala, ainda que interessantes, não satisfazem o grau de especificidade necessário para distinguir entre os diferentes modelos para o SPM. O que nós podemos concluir é que há uma redução na taxa de relaxação magnética na região do SPM, implicando numa contribuição dinâmica na formação do SPM. No entanto, é difícil afirmar que este efeito deve-se a um aumento da força de aprisionamento ou por uma transição na dinâmica de vórtices apenas por estes resultados. Assim, demonstramos com estes resultados que a lei de escala por nós desenvolvida pode ser utilizada para obter parâmetros relevantes da movimentação de vórtices no material, enriquecendo a discussão deste tema tão rico que é a dinâmica de vórtices.

5.4.3 Testando a dependência do SPM com as dimensões da amostra

Numa tentativa de adquirir mais informações a respeito do segundo pico na magnetização e suas possíveis origens, decidimos estudar a influência das dimensões da amostra no desenvolvimento do SPM. Para tanto quebramos controladamente a amostra de Er:123 e repetimos toda uma série de medidas para checar se com isso afetávamos o SPM e os resultados obtidos da aplicação da lei de escala¹¹. Se o segundo pico tiver sua origem numa transição da dinâmica de vórtices, por exemplo, não esperamos maiores influências das dimensões da amostra. Mas se sua origem dever-se ao efeito de avalanches de fluxo, a dimensão da amostra seria um parâmetro fundamental já que estaria associada a troca de calor com o ambiente. O mesmo vale para o caso de uma origem devida a inhomogeneidades da amostra, já que quanto menor o pedaço da amostra que olhamos, mais provável que este seja homogêneo.

Nas figuras 5.27 e 5.28 apresentamos a fotografia da amostra antes (Fig 5.27) e depois (Fig. 5.28) dela ser quebrada pela primeira vez. O tamanho dos pedaços obtidos não é muito homogêneo, mas

¹¹C. A. Cardoso *et al.*, em preparação.

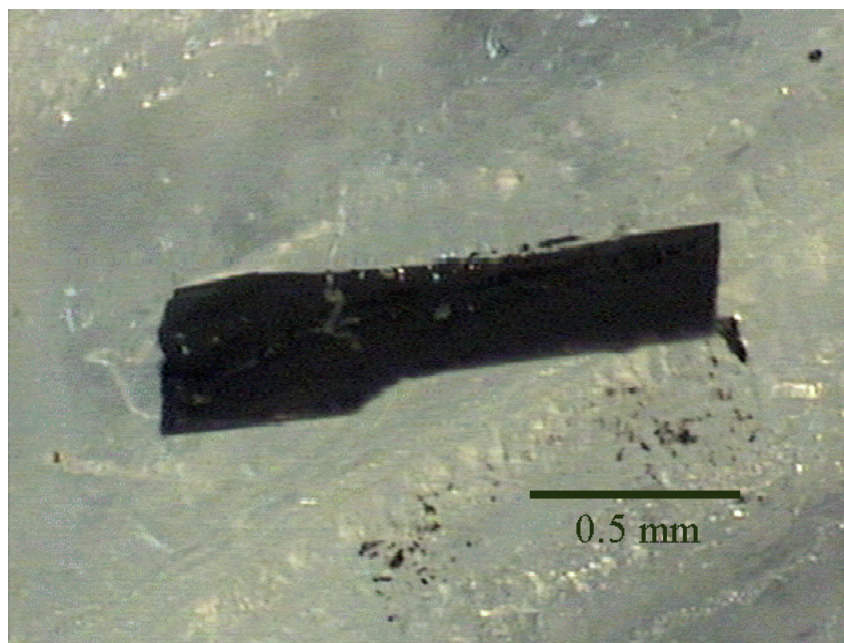


Figura 5.27: Fotografia da amostra Er:123 em seu tamanho original.

por mais cuidadosos que sejamos este processo de clivar a amostra é sempre muito delicado e o risco de quebrá-la em pedaços demasiadamente pequenos é muito grande. Assim achamos prudente não insistir em obter pedaços de dimensões muito parecidas, mas confiar em que o resultado obtido seria uma média da resposta de cada pedaço individualmente. Além disso, após a clivagem alguns pedaços se desprenderam da base onde estavam montados. Desta forma, tivemos de reavaliar o volume da amostra efetivamente medida. A estimativa foi feita primeiramente comparando o tamanho dos pedaços remanescentes com o da amostra original, e também pelo valor absoluto da componente real da suscetibilidade na região de pequenas amplitudes. Ambas estimativas apontaram para um volume remanescente da ordem de 45% do volume original do cristal. Ao calcularmos o valor da magnetização para a amostra quebrada, devemos então levar esta mudança no volume da amostra em consideração.

Após esta primeira clivagem, repetimos as medidas feitas anteriormente com a amostra inteira. As curvas de histerese a 70 e 80 K são apresentadas nas figuras 5.29 e 5.30, comparando-as com os resultados obtidos para a amostra inteira. Podemos observar que alguns pontos saem bastante fora da curva base para ambos os estados da amostra. No entanto, acredito que tais pontos são pontos

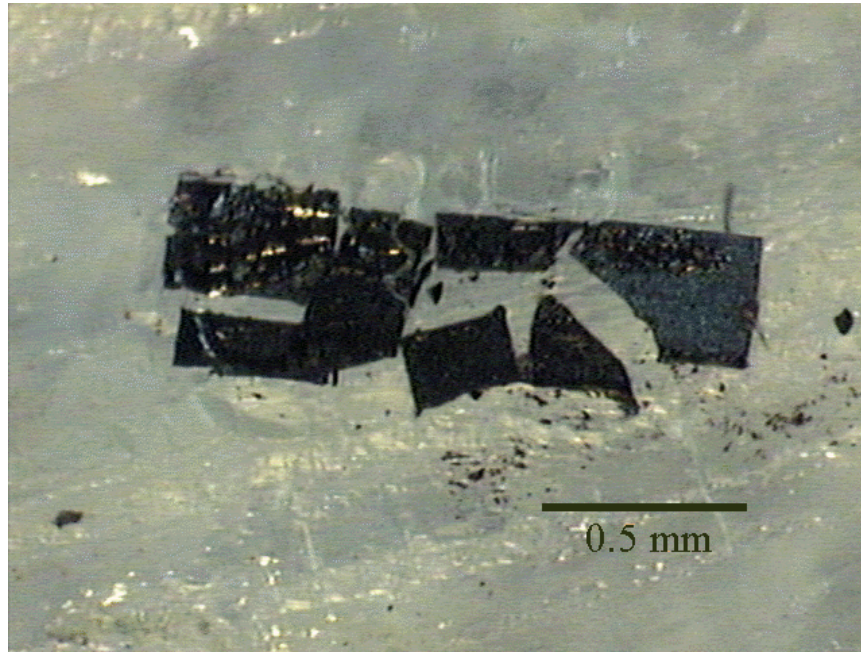


Figura 5.28: Fotografia da amostra Er:123 após a primeira fase de clivagem.

espúrios, razoavelmente comuns em medidas como essas, não sendo relacionado com avalanches de fluxo. Entretanto, o aspecto mais interessante destas medidas está no deslocamento do SPM para campos mais baixos para a amostra quebrada, em ambas as temperaturas. Esta mesma tendência foi observada na ref. [89] e indica que há realmente uma influência da dimensão da amostra no surgimento do SPM. Chama a atenção ainda o fato do laço de histerese ser mais estreito para a amostra quebrada, possivelmente devido a uma redução da intensidade do segundo pico e também pelo fato do campo de penetração total (modelo de Bean) ser menor. Podemos ainda observar que a mudança no laço de histerese é maior para campos acima de H_{SPM} , especialmente nos ramos decrescentes.

Tendo analisado o comportamento do SPM nas medidas de histerese após a quebra da amostra, partimos então para o estudo da lei de escala. Novamente obtivemos um ótimo colapso das curvas de $\chi \times h_0$ e, já que não há maiores novidades nesta questão, não apresentaremos os resultados aqui. As conclusões obtidas para a amostra inteira continuam válidas em geral para a amostra quebrada, especialmente no que diz respeito à validade da aproximação logarítmica. Não houve, portanto, nenhuma mudança radical no comportamento da amostra, o que é razoável já que reduzimos sua

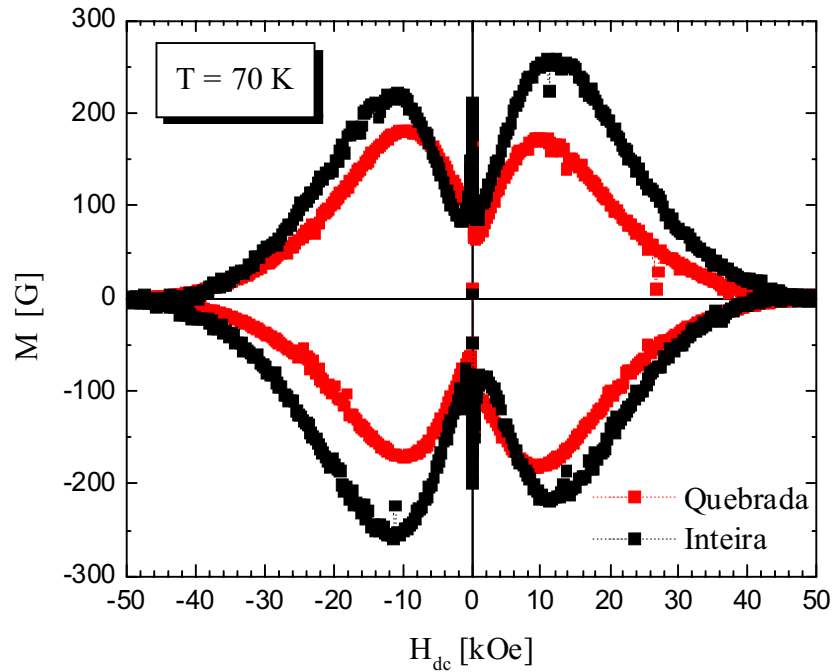


Figura 5.29: Curvas de histerese da amostra inteira (em preto) e depois de quebrada (vermelho), para $T = 70\text{ K}$.

menor dimensão pela metade, insuficiente para provocar mudanças muito radicais.

Aplicando assim a lei de escala e ajustando a aproximação obtemos assim o expoente de creep n , que está apresentado na figura 5.31. A comparação entre os valores obtidos para o expoente de creep para a amostra inteira e quebrada indica uma redução da movimentação de vórtices a campos baixos, assim como um aumento desta movimentação para campos mais altos. Como consequência desta mudança, podemos observar o deslocamento do máximo de n para um valor de campo mais baixo. Estes são resultados muito interessantes, quando comparados com as curvas de histerese, Fig. 5.30. Em primeiro lugar, o máximo de n novamente coincide com a posição do SPM, reforçando assim a correlação entre estes dois dados. A maior mudança de comportamento após a quebra da amostra ocorre exatamente para campos acima de H_{SPM} , novamente de acordo com as curvas de histerese. Também é interessante notar que a variação de n com o campo magnético é um pouco menor no caso da amostra quebrada, o que seria consistente com uma redução da intensidade do

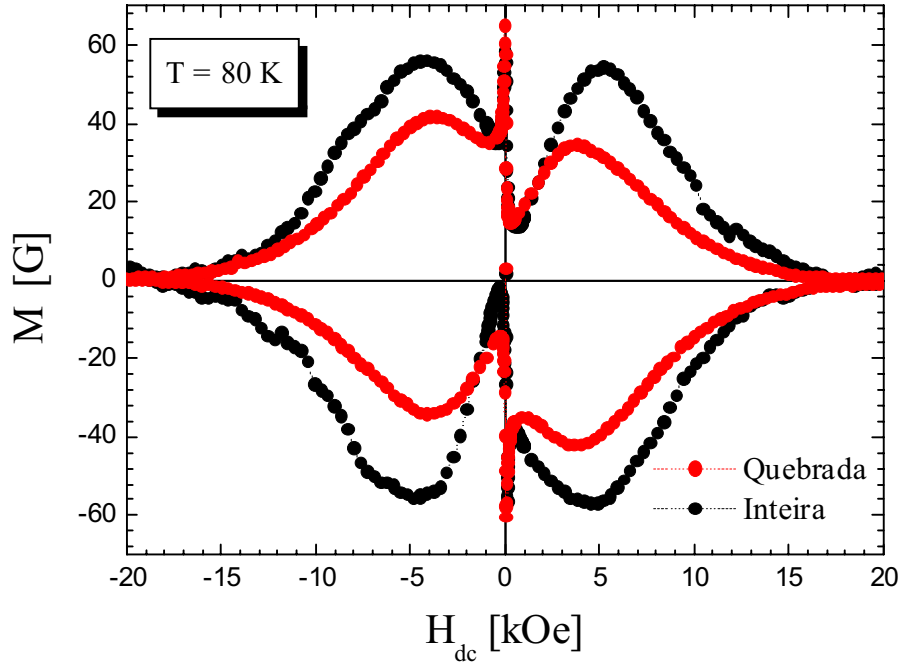


Figura 5.30: Curvas de histerese da amostra inteira (em preto) e depois de quebrada (vermelho), para $T = 80\text{ K}$.

SPM.

A situação para $T = 70\text{ K}$, no que diz respeito à lei de escala, infelizmente não é tão favorável. As medidas apresentam uma maior dispersão e é basicamente impossível obter valores confiáveis para o expoente de creep neste caso. A situação é particularmente crítica para $H_{dc} > H_{SPM}$. De fato, algo semelhante já havia ocorrido para os dados tomados com a amostra inteira, mas nada tão crítico quanto desta vez. Desta forma, nossa discussão está basicamente limitada a dados obtidos em uma única temperatura, $T = 80\text{ K}$. A sequência lógica deste estudo seria quebrar a amostra em pedaços ainda menores, repetir as medidas, quebrar a amostra novamente e assim sucessivamente até atingir a dimensão crítica abaixo da qual o SPM supostamente desapareceria. Entretanto, o que é simples na teoria não foi tão fácil na prática. De fato, nós tentamos dar sequência a esta série de clivagens e medidas, mas a dificuldade de manipular pedaços tão pequenos de amostra, juntamente

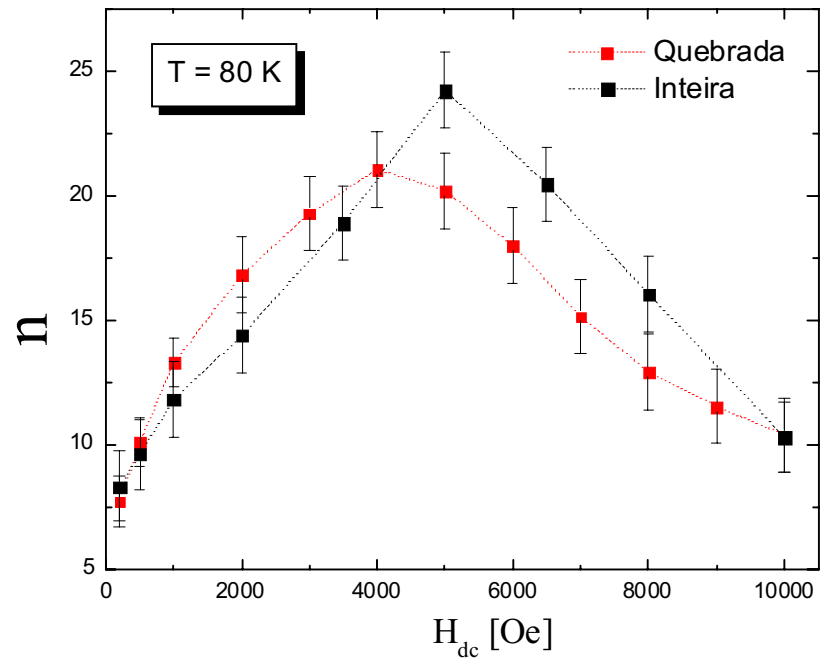


Figura 5.31: Expoente de creep n em função do campo magnético aplicado. Medidas feitas com a amostra inteira (em preto) e quebrada (vermelho).

com uma preocupação crescente com um ruído de fundo anormalmente alto, acabou por inviabilizar esta continuação do trabalho.

Os dados que obtivemos não são, infelizmente, tão completos quanto desejávamos, mas ainda assim nos permitem certas conclusões. Em primeiro lugar, mostramos com um exemplo concreto, que a lei de escala generalizada que estudamos ao longo deste trabalho pode ser aplicada na obtenção de parâmetros relevantes da movimentação de vórtices no supercondutor, sendo portanto mais uma ferramenta a nossa disposição para o estudo desta dinâmica. Aplicando esta ferramenta então ao estudo do SPM obtivemos uma clara mudança da relaxação magnética para campos em torno de H_{SPM} , o que indica uma forte contribuição dinâmica para a formação do SPM. Além disso, ao reduzirmos as dimensões da amostra, observamos uma mudança na intensidade e posição do SPM aparentemente relacionada com um aumento na taxa de relaxação magnética para campos acima de H_{SPM} . Esta dependência com a dimensão da amostra é consistente tanto com a idéia da ocorrência de avalanches de vórtices na amostra, quanto com a possível influência de inomogeneidades da amostra no surgimento do SPM. Um estudo mais detalhado desta questão seria interessante para resolver as questões que continuam em aberto.

Capítulo 6

Aplicações básicas da suscetibilidade AC

Provavelmente a mais comum e direta aplicação da suscetibilidade AC no estudo de materiais supercondutores está na simples determinação da temperatura crítica destes compostos. Os motivos desta predileção pela suscetibilidade vem da conjugação das características da técnica já apresentadas na introdução (simplicidade experimental, sensibilidade, etc) com algumas necessidades particulares. Sabe-se, por exemplo, que a temperatura crítica depende do campo magnético aplicado e quando falamos em T_c em geral estamos nos referindo, ou interessados, a $T_c(H_{dc} = 0)$. Assim, usar medidas da magnetização DC para determinar T_c tem a desvantagem de que é necessário aplicar um pequeno campo magnético para poder fazer a medida (e assim não obtemos $T_c(0)$). Já a suscetibilidade pode ser medida com $H_{dc} = 0$, aplicando apenas um campo excitador AC que pode ser muito pequeno (2 ou 3 ordens de grandeza menores que os campos utilizados em magnetização DC). Outra vantagem de se medir a campos mínimos está no alargamento da transição supercondutora com o campo magnético. Este alargamento de certa forma dificulta a determinação precisa de T_c . A suscetibilidade AC também revela mais claramente a ocorrência de uma dupla transição devido a granularidade ou inhomogeneidade da amostra, podendo assim ser usada também para testar a qualidade da amostra medida.

Uma possível desvantagem da suscetibilidade na determinação da temperatura de transição seria a possibilidade da excitação magnética utilizada penetrar apenas numa camada muito superficial da

amostra. Se a amostra em questão apresentar diferentes T_c 's no seu interior e na superfície¹, por exemplo, a suscetibilidade revelaria apenas a resposta da superfície e não necessariamente representaria a amostra como um todo. A profundidade de penetração da excitação externa na amostra é diretamente proporcional a amplitude e inversamente proporcional a frequência do campo excitador. Já que usualmente procura-se medir a baixos campos, é importante utilizar uma frequência razoavelmente baixa também, para que a excitação penetre um volume razoável da amostra. Já que a medida da suscetibilidade AC detecta sinais apenas com a mesma frequência do campo excitador, usualmente adota-se valores para esta frequência que sejam não apenas baixos, mas também diferentes das frequências dos ruídos mais comuns no laboratório (ou seus harmônicos).

Durante o desenvolvimento do nosso projeto de doutoramento, tivemos a oportunidade de participar de algumas colaborações visando o estudo do efeito de diferentes dopantes em alguns sistemas supercondutores. Sob a coordenação do Dr. V.P.S. Awana, na época trabalhando em nosso laboratório, utilizamos medidas de suscetibilidade AC na determinação da temperatura crítica destes materiais. Com tais informações, juntamente com outros resultados experimentais fornecidos por outros membros destas colaborações, buscamos testar certas hipóteses importantes para o entendimento dos mecanismos da supercondutividade nos HTSC.

Assim, antes de iniciarmos uma discussão mais específica sobre as medidas de suscetibilidade em si, vamos apresentar brevemente alguns destes trabalhos como uma ilustração concreta da aplicação simples da técnica de suscetibilidade AC. Apresentaremos a princípio uma introdução sobre a motivação por trás destes trabalhos e a seguir trataremos cada um deles em particular.

6.1 Estudos substitucionais em supercondutores

Desde a descoberta das cerâmicas supercondutoras, muito esforço tem sido feito para compreender os mecanismos envolvidos no aparecimento da supercondutividade nestes sistemas. Um dos meios mais utilizados para tentar clarificar este cenário consiste em estudar o efeito que diferentes substituições têm nas propriedades destes materiais. Além deste ponto central, ou mesmo como consequência dele, estudos substitucionais também estão as voltas com a descoberta de novos materiais e a busca de supercondutores com temperaturas de transição cada vez mais altas. A complexidade dos sistemas estudados tem, entretanto, frustado até agora a obtenção de modelos que consigam explicar todos

¹O que é comum em supercondutores de alta temperatura crítica.

os diversos resultados experimentais simultaneamente. Outro ponto sempre em questão relaciona-se à confiabilidade destes resultados experimentais, já que inomogeneidades, amostras com múltiplas fases, substituições em sítios indesejados, impurezas, entre outros, são sérios problemas na síntese de amostras destes materiais (especialmente quando deseja-se controlar a quantidade de dopantes com grande precisão). Em resumo, enquanto os teóricos buscam refinar seus modelos, os experimentais buscam aperfeiçoar suas técnicas para obter amostras cada vez melhores para estudos cada vez mais detalhados de suas propriedades. A esperança é que com resultados cada vez mais completos acabaremos por chegar a um quadro mais claro da supercondutividade.

Durante nosso doutoramento, buscamos utilizar medidas de suscetibilidade AC para a caracterização magnética de amostras policristalinas de diferentes sistemas, como complemento a caracterizações estruturais, onde utilizou-se difração de nêutrons e raios X. Desta forma, apresentaremos a seguir uma discussão breve destes trabalhos que envolve mais resultados que apenas suscetibilidade AC (que é o tópico desta tese e foi o cerne da nossa contribuição para estes trabalhos).

6.1.1 Difração de neutrons no sistema $Er_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($0.0 \leq x \leq 0.3$): Possíveis vacâncias de oxigênio nos planos de CuO_2

No sistema RE:123 (RE = terra rara), o sítio da terra rara localiza-se entre os planos de cobre-oxigênio². Este sanduíche, por sua vez, fica entre os planos de bário-oxigênio formando uma estrutura fortemente anisotrópica em camadas: BaO/CuO₂/RE/CuO₂/BaO, ver figura 6.1. Estas pilhas de planos, usualmente considerada como invariante para um dado composto, são interconectadas por uma camada de átomos de cobre e oxigênio de composição variável CuO_x. Os sítios de oxigênio nos planos de CuO₂ são identificados como O(2) (entre os átomos de cobre na direção a) e O(3) (no eixo b), enquanto os sítios de cobre nestes planos são Cu(2). O oxigênio nos planos de BaO são indexados como O(4). Já nas cadeias CuO_x os sítios de cobre são chamados de Cu(1) e os de oxigênio de O(1), na direção b, e O(5) na direção a, ver figura 6.1.

A família RE:123, quando plenamente oxigenada, apresenta os sítios O(1) plenamente ocupados

²Ainda que seja usual se referir a estes compostos como RE:123, é importante observar que o sítio de terra rara pode ser ocupado por outros íons, além de terras raras. De fato, o representante mais conhecido e estudado desta família é o Y:123, sendo que o Y é um metal de transição, e não uma terra rara. Ainda que neste trabalho tenhamos tentado evitar esta confusão, em geral não se distingue o ítrio das terras raras e a abreviação RE muitas vezes refere-se a ambos, ítrio e terras raras.

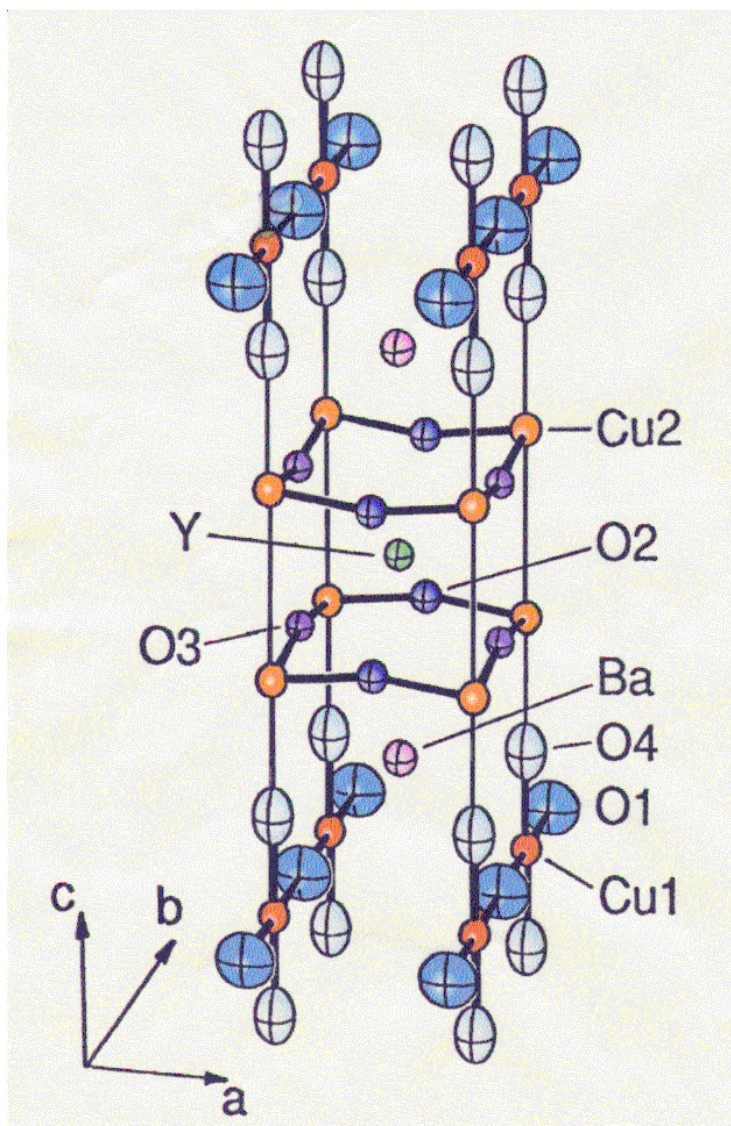


Figura 6.1: Representação esquemática da célula unitária do composto Y:123.

enquanto os sítios O(5) ficam essencialmente vazios (e por isso nem aparecem na figura 6.1). Esta diferença na ocupação dos sítios O(1) e O(5) faz com que a célula unitária apresente $b > a$, ou seja, apresente uma estrutura ortorrômbica. Os oxigênios O(1) podem, entretanto, ser facilmente removidos e o sistema passa por uma transição estrutural ortorrômbica-tetragonal. Com a redução da dopagem dos planos de CuO_2 com portadores de carga, decorrente da redução do conteúdo de oxigênio nas cadeias CuO que ocorre juntamente com esta mudança estrutural, vem a supressão da supercondutividade. De fato, o sistema $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ é um isolante antiferromagnético com ordenamento dos spins do cobre para $\delta \approx 1$. Já amostras completamente oxigenadas ($\delta \approx 0$) são supercondutores com temperatura de transição T_c em torno de 90 K para qualquer terra rara exceto Ce, Tb e Pr [99]. Partindo de um composto deficiente em oxigênio ($\delta \approx 1$), o aumento do conteúdo de oxigênio na amostra aumenta a densidade de portadores de carga. Estes portadores inicialmente reduzem o ordenamento magnético de longo alcance dos spins do cobre e posteriormente levam o sistema a passar de antiferromagneto isolante para supercondutor metálico [37, 99]. Entretanto, este não é o único modo de introduzir portadores de carga. Substituições aliovalentes, por exemplo substituindo a RE^{3+} por Ca^{2+} , adiciona buracos aos planos de CuO_2 e podem assim induzir a supercondutividade em sistemas pobremente oxigenados [76]. Poderia-se considerar então que a soma de ambos os processos (oxigenação e dopagem com cálcio) poderia levar a T_c 's ainda maiores, desde que o sistema plenamente oxigenado não corresponda a situação de dopagem ótima³. A experiência mostra que a situação não é tão simples. De fato, a análise do comprimento das ligações e concentração de oxigênio nos sistemas $(\text{Y/Er})_{1-x}\text{Ca}_x\text{:123}$ sugerem que a introdução de portadores com a dopagem com cálcio apenas ocorra para amostras deficientes em oxigênio; no caso de amostras totalmente oxigenadas, a dopagem com cálcio parece induzir ao aparecimento de vacâncias de oxigênio nos planos de CuO_2 [11, 117]. No caso de compostos com terras raras de maior raio iônico (como Nd e Sm), ao contrário, observa-se que as vacâncias de oxigênio ocorrem quase exclusivamente nas cadeias de CuO [117]. A ocorrência de vacâncias nos planos de CuO_2 é um fenômeno de grande interesse, já que é essencialmente nestes planos que a supercondutividade ocorre e espera-se que qualquer disordem nestes planos deva afetar fortemente a supercondutividade.

Para confirmar o que realmente está acontecendo neste caso, realizamos neste trabalho⁴ um

³Neste caso, o aumento da dopagem dos planos com portadores levaria a uma *redução* da temperatura de transição, já que o sistema passaria para a situação de excesso de dopagem (*overdoping*).

⁴V.P.S. Awana, S.K. Malik, W.B. Yelon, C.A. Cardoso, O.F. de Lima, A. Gupta, A. Sedky e A.V. Narlikar, *Physica*

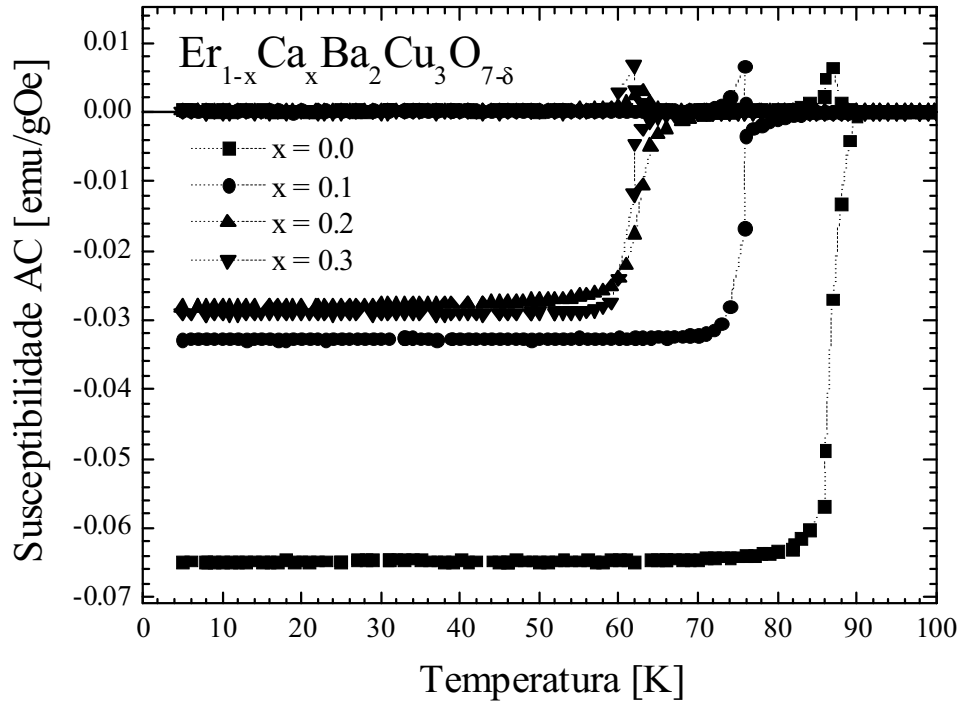


Figura 6.2: Suscetibilidade AC em função da temperatura para diferentes concentrações de cálcio. Para todas as medidas utilizou-se $h_0 = 1$ Oe e $\nu = 73$ Hz.

estudo dos padrões de difração de nêutrons no sistema $Er_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ para diferentes concentrações de cálcio. As amostras policristalinas foram preparadas por reação no estado sólido e então caracterizadas por difração de neutrons e de raios X, além de medidas de suscetibilidade AC.

Medidas da suscetibilidade complexa em função da temperatura são apresentadas na figura 6.2. Todas as amostras estudadas apresentaram uma única transição estreita, indicando uma amostra muito homogênea, sem sinal de fases secundárias. Observa-se uma gradual redução de T_c com o aumento da dopagem de cálcio. A dopagem com cálcio, para um sistema plenamente oxigenado, é portanto prejudicial à supercondutividade. A medida de suscetibilidade satura a valores diferentes, o que deve-se a uma combinação de fatores de desmagnetização e frações supercondutoras diferentes

para cada amostra. Entretanto, sendo nosso único interesse nestas medidas a determinação de T_c , não iremos explorar estas questões em maior detalhe⁵.

O estudo por difração de raios X mostra que todas as amostras apresentam uma única fase com estrutura cristalina ortorrômbica característica do sistema RE:123. Os resultados da difração de nêutrons passaram então por refinamento de Rietveld dentro desta estrutura cristalina. A análise destes resultados indicou que a substituição do cálcio neste sistema ocorreu de forma isoestrutural nas amostras estudadas. Verificou-se ainda que a ocupação dos sítios O(2) e O(3) apresentam uma pequena redução com o aumento da dopagem de cálcio. A ocupação dos sítios O(1) também apresenta redução, enquanto nos sítios O(5) tem um aumento da sua ocupação. Estes resultados implicam numa série de consequências. Em primeiro lugar, a redução na ocupação dos sítios O(2) e O(3) apontam para o surgimento de vacâncias nos planos de CuO_2 , o que acreditamos ser um dos principais responsáveis pela supressão da supercondutividade com a dopagem com cálcio. A redução da ocupação na posição O(1) e aumento na O(5) indica um rearranjo da distribuição de oxigênio no material que leva a uma redução da ortorrombicidade da célula unitária. A concentração total de oxigênio também é menor para maiores concentrações de cálcio, o que contribui para a supressão da supercondutividade. Outro elemento que favorece a redução em T_c é a redução no ângulo Cu(2)-O(2)-Cu(2) observada com o aumento da dopagem. A diminuição neste ângulo reduz a pressão cristalográfica interna na célula unitária, o que pode também suprimir a supercondutividade [40].

Em resumo, a dopagem do sistema Er:123 com cálcio leva a uma supressão da supercondutividade devido essencialmente a redução da concentração de oxigênio nas amostras. Ainda que a maior parte do oxigênio perdido venha das cadeias (O(1)), uma parte significativa vem dos sítios nos planos de CuO_2 (O(2) e O(3)). Espera-se que estas vacâncias no plano afete fortemente a supercondutividade. A redução do ângulo Cu(2)-O(2)-Cu(2) também contribui para a supressão da supercondutividade. Finalmente, o rearranjo dos átomos de oxigênio na estrutura leva a um aumento na ocupação do sítio O(5), reduzindo a ortorrombicidade do sistema.

⁵Esta mesma discussão também será omitida nos trabalhos que apresentaremos posteriormente, já que sempre estamos concentrados na determinação de T_c apenas.

6.1.2 Supressão da supercondutividade com a substituição de Pr no sistema



Dentre todas as terras raras, o praseodímio ocupa uma posição de destaque nos estudos substitucionais em supercondutores. No sistema RE:123 (RE = terra rara), por exemplo, a temperatura da transição supercondutora é praticamente independente da terra rara utilizada. As exceções são Ce, Tb e Pr, sendo que os dois primeiros não formam a estrutura cristalina desejada [111]. O não aparecimento da supercondutividade no sistema Pr:123 é assim um caso único. Várias explicações para este fenômeno já foram apresentadas, tais como a redução da densidade de portadores por *hole filling* [106, 113], quebra de pares devido ao momento magnético dos íons de Pr [98] ou ainda pela hibridização dos orbitais $4f$ do Pr e $2p$ do O(2) [58, 120]. O surgimento de trabalhos reportando a obtenção de amostras supercondutoras de Pr:123 [139, 108, 131] deixaram o quadro ainda mais interessante e nebuloso.

Uma propriedade deste sistema, que tem sido muito pouco explorada até o momento, é o ordenamento antiferromagnético dos íons de Pr para temperaturas em torno de $T_N \approx 17K$. A dependência da temperatura de Néel em termos da distância Pr e o plano CuO_2 é consistente com a ocorrência da hibridização dos orbitais do praseodímio e oxigênio. De fato, com o aumento desta distância e consequente redução na hibridização $Pr^{4f}-O^{2p}$ observa-se uma redução de T_N [97, 81]. A hibridização $Pr^{4f}-O^{2p}$ criaria estados localizados que poderiam assim explicar simultaneamente a supressão da supercondutividade e o ordenamento antiferromagnético na fase isolante.

Neste trabalho⁶ buscamos endereçar estas discussões para o sistema $Nd_{1-x}Pr_xBaCaCu_3O_7$. As amostras policristalinas para diferentes dopagens de Pr foram preparadas por reação no estado sólido da mistura em proporção estequiométrica de Nd_2O_3 , Pr_6O_{11} , $BaCO_3$ e CuO de 4N de pureza. As amostras foram então caracterizadas por difração de raios-X e medidas de suscetibilidade AC e magnetização DC.

Os padrões de difração de raios-X para diferentes concentrações de praseodímio mostram que as amostras obtidas apresentam uma única fase com estrutura tetragonal, sem traços de impurezas. Ao contrário do sistema RE:123, sabe-se que o sistema RE:1113 ($REBaCaCu_3O_7$) cristaliza numa estrutura tetragonal com conteúdo de oxigênio próximo de 7 [64]. Neste sistema ocorre substituições

⁶V.P.S. Awana, C.A. Cardoso, O.F. de Lima, R. Singh, A.V. Narlikar, W.B. Yelon, e S.K. Malik, Physica C 316 (1999) 113.

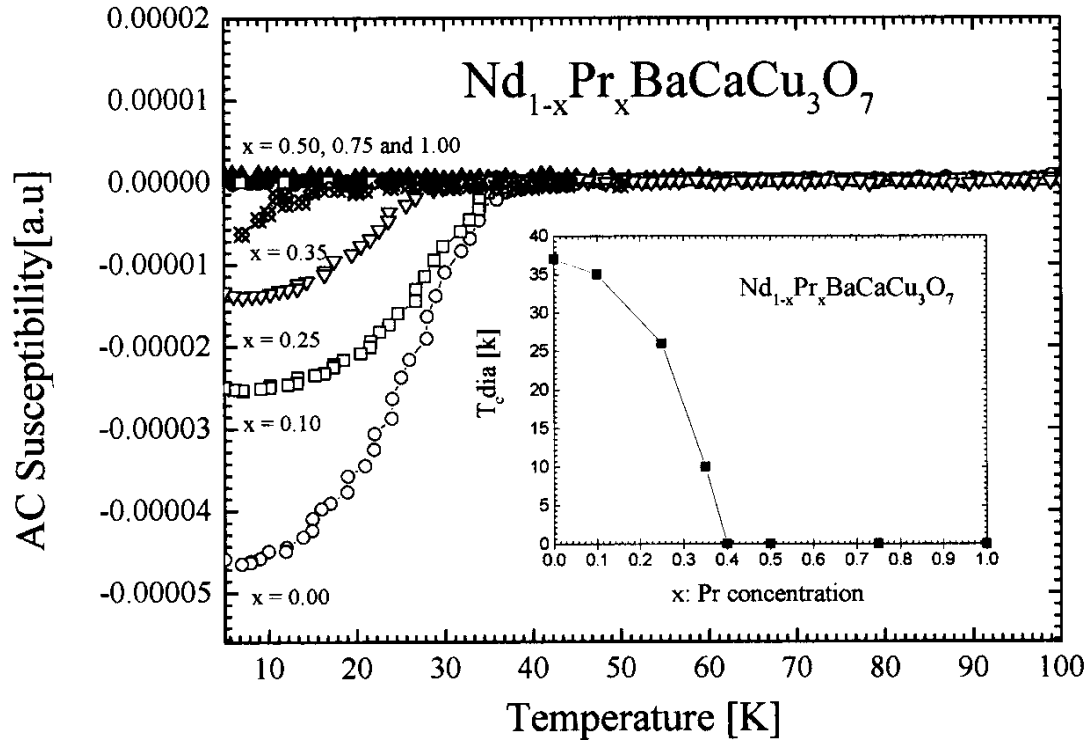


Figura 6.3: Componente real da suscetibilidade AC em função da temperatura para diferentes concentrações de Pr. Inset: T_c (definida pelo início da transição) em função da dopagem de praseodímio. Para todas as medidas utilizou-se $h_0 = 1 \text{ Oe}$ e $\nu = 73 \text{ Hz}$.

cruzadas envolvendo os sítios de Ca, Ba e RE [9]. A desordem associada a estas substituições cruzadas leva a uma ocupação igual dos sítios O(1) e O(5), eliminando a ortorrombicidade do sistema para conteúdo de oxigênio próximo de 7 [64, 9]. As substituições cruzadas são responsáveis ainda por só ser possível crescer amostras do sistema RE:1113 com terras raras leves (tais como La, Nd e Pr), que são capazes de trocar de lugar com o Ba [121].

Na Fig. 6.3 apresentamos a componente real da suscetibilidade AC em função da temperatura, para diferentes concentrações de Pr. Podemos observar uma redução monotônica da temperatura crítica com o aumento da concentração de Pr, sendo que a supercondutividade é completamente suprimida para concentrações superiores a $x = 0.50$. Já o gráfico do inverso da magnetização DC em função da temperatura para a amostra com substituição total de Pr ($x = 1.00$), Fig. 6.4, apresenta um claro desvio do comportamento linear (comportamento tipo Curie-Weiss) para temperaturas

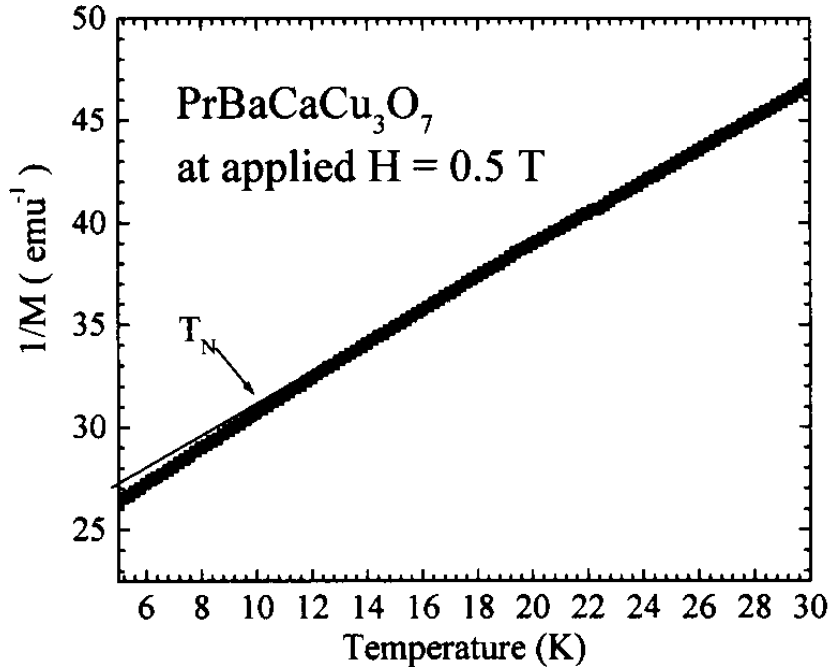


Figura 6.4: Inverso da magnetização em função da temperatura para amostra Pr:1113.

abaixo de $T_N \approx 10\text{K}$, indicando um possível ordenamento magnético dos íons de Pr nesta temperatura. Comparando estes resultados com valores obtidos para o sistema $\text{Nd}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ observamos que a supressão da supercondutividade é muito mais lenta no caso do sistema NdPr:1113 do que para NdPr:123 (ver figura 6.5), além da supercondutividade só ser totalmente suprimida a uma concentração maior de Pr. Outro ponto importante é a temperatura de ordenamento magnético ser significativamente mais baixa no sistema NdPr:1113. Estes resultados indicam uma forte correlação entre a supressão da supercondutividade e o ordenamento magnético dos íons de Pr. Uma temperatura de ordenamento magnético T_N mais baixa implica numa menor hibridização do orbital Pr- $4f$ com a banda de condução Cu-O e, conseqüentemente, numa supressão menos efetiva da supercondutividade com o aumento da dopagem de Pr no sistema NdPr:1113 do que o observado para NdPr:123. Se esta interpretação estiver correta, deve-se observar a ocorrência de supercondutividade no sistema Pr:123 se for possível aumentar a distância entre o íon de praseodímio e os planos CuO_2 . De fato, no caso da amostra monocristalina de Pr:123 supercondutor já obtida, observou-se um parâmetro c para a célula unitária relativamente grande [139], o que estaria de acordo com o

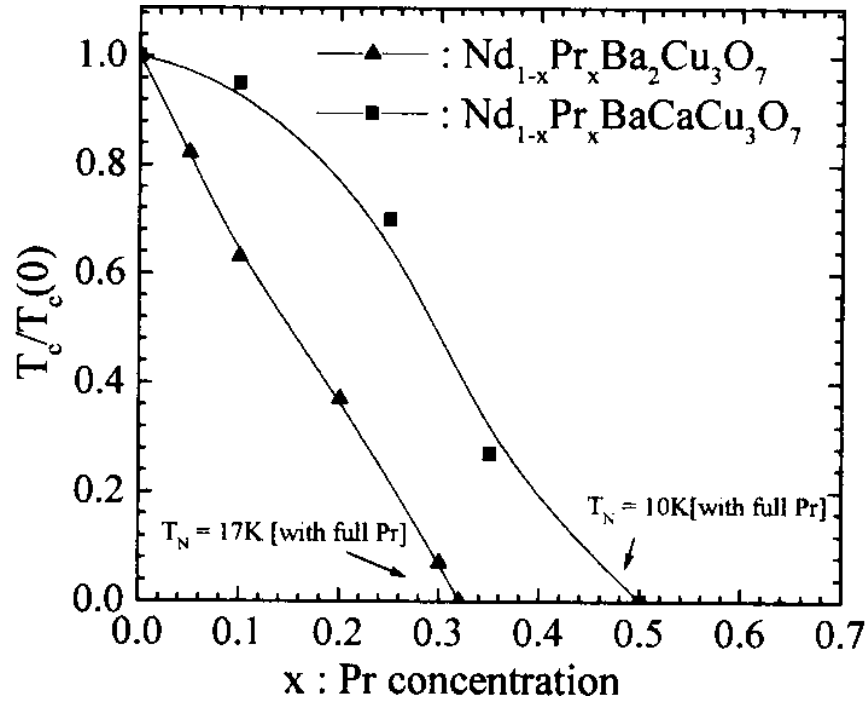


Figura 6.5: Temperatura crítica normalizada em função da concentração de Pr para os sistemas NdPr:123 (Ref. 34) e NdPr:1113.

raciocínio apresentado acima.

6.1.3 Forte dependência da temperatura da transição supercondutora com o raio iônico da terra rara na série $\text{RBaSrCu}_3\text{O}_7$ ($R = \text{Y}, \text{Dy}, \text{Nd}, \text{La}$)

No trabalho anterior estudamos a supressão da supercondutividade no sistema NdPr:1113. Vimos que esta família apresenta uma série de propriedades únicas, tais como a sua estrutura cristalina com conteúdo de oxigênio próximo de 7, além da impossibilidade de formar compostos com terras raras mais pesadas. Além disso, a temperatura de transição é fortemente dependente do raio iônico da terra rara. A influência do íon no sítio da terra rara nas propriedades supercondutoras ainda não é um ponto completamente compreendido. Vejamos a questão da dependência de T_c com a terra rara, por exemplo. Não apenas o sistema RE:1113 apresenta T_c dependente com o raio iônico, mas o mesmo é válido para alguns outros sistemas também, tais como RE:124 e RE:247 [3, 30]. Já para a família RE:123, T_c é praticamente independente da terra rara adotada. Ainda assim, a supressão

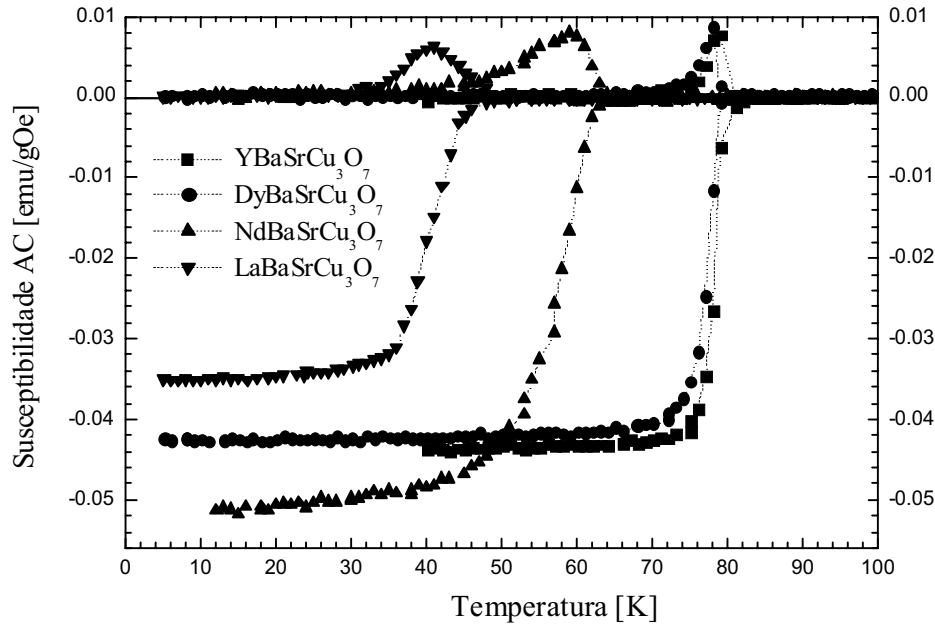


Figura 6.6: Suscetibilidade AC em função da temperatura para diferentes íons no sítio da terra rara. Para todas as medidas utilizou-se $h_0 = 1 \text{ Oe}$ e $\nu = 73 \text{ Hz}$.

da supercondutividade nestes sistemas com dopagens com Pr ou metal $3d$, por exemplo, depende do raio iônico da terra rara [5, 98, 130].

Neste trabalho⁷, estudamos a dependência da transição supercondutora com o raio iônico em uma família pouco estudada, intermediária entre as famílias RE:123 e RE:1113, os compostos $RBaSrCu_3O_7$. Para verificarmos a dependência de T_c com o raio iônico do íon presente no sítio da terra rara, preparamos um conjunto de amostras via reação no estado sólido com $R = Y, Dy, Nd, La$. Com estas terras raras cobrimos toda a série dos lantanídeos e, juntamente com o ítrio, temos assim uma grande variação do raio iônico, indo do menor (Y), até o maior (La). As amostras assim obtidas foram então caracterizadas por suscetibilidade AC e difração de nêutrons.

As medidas de suscetibilidade AC para todas as amostras, apresentadas na figura 6.6, apresentam

⁷V.P.S. Awana, S.K. Malik, C.A. Cardoso, O.F. de Lima, A. Gupta, A. Sedky, W.B. Yelon, R. Prasad e A.V. Narlikar, Mod. Phys. Lett. B 14, 10 (2000), 361; Physica C 341-348 (2000), 627

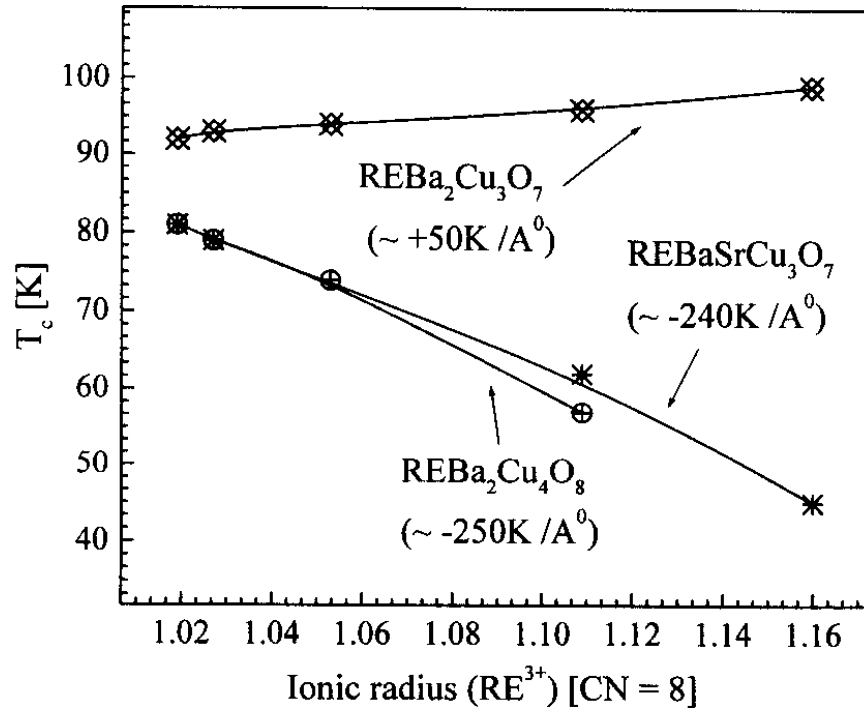


Figura 6.7: Comparação da dependência de T_c com o raio iônico do ocupante do sítio da terra rara para diferentes famílias de supercondutores.

uma única transição, indicando a boa qualidade das amostras estudadas. Podemos observar nesta figura que a temperatura de transição apresenta uma significativa dependência com o raio iônico da terra rara. A temperatura crítica é máxima para $R = Y$ (menor raio iônico), apresentando uma sistemática redução conforme aumentamos o raio do íon até chegarmos a $R = La$ (maior raio iônico). Para compararmos os resultados obtidos no presente trabalho com os obtidos anteriormente para outros sistemas supercondutores, na figura 6.7 apresentamos a variação de T_c com o raio iônico do íon do sítio da terra rara para os sistemas RE:123 [128] e RE:124 [101]. Interessante notar que não há concordância entre diferentes grupos sobre a dependência de T_c com a terra rara para a família RE:123. De fato, há relatos indicando tanto o aumento [95, 128], como a redução [74, 91] de T_c conforme aumenta-se o raio iônico, mas com T_c sempre dentro do intervalo de 92 a 99 K. Já para RE:124 [3, 101] e RE:247 [30, 39] existe atualmente um consenso sobre a redução de T_c com o aumento do raio iônico da terra rara. Os resultados obtidos por difração de nêutrons foram analisadas via refinamento de Rietveld dentro da estrutura ortorrômbica (grupo espacial

Pmmm). Observou-se que para os íons menores, $R = Y, Dy$, pode-se obter um bom ajuste com uma estrutura com ortorrombicidade bastante reduzida. Já para $R = Nd, La$ a ortorrombicidade é tão reduzida que pode-se considerar que a estrutura cristalina destes compostos é tetragonal ou pseudotetragonal. De fato, a ortorrombicidade destes compostos é tão reduzida que o refinamento de Rietveld torna-se instável no grupo espacial Pmmm. Passando então para uma estrutura tetragonal (grupo espacial $P4/mmm$), obtêm-se uma rápida convergência dos parâmetros de rede com um desvio padrão muito menor do que o obtido mantendo a análise no grupo Pmmm. Verificou-se ainda que, apesar dos compostos com $R = Y, Dy$ serem ortorrômnicos e os com $R = Nd, La$ serem tetragonais, o conteúdo de oxigênio para todas as amostras é próximo de sete para todas as amostras: 7.07 para o composto com Y, 7.03 para o Dy, 7.02 para o La e 7.04 para o Nd. Como não observamos uma significativa variação da concentração de oxigênio entre as amostras, creditamos a transição ortorrômica-tetragonal que observamos ao substituímos o ocupante do sítio de terra rara como sendo devida unicamente ao rearranjo dos átomos de oxigênio nos sítios O(1) e O(5). Sendo a ocupação destes dois sítios igual temos $a = b$ e a estrutura é tetragonal. Algo semelhante já havia sido observado por nós no estudo do composto $Nd_{1-x}Pr_xBaCaCu_3O_7$ [8, 9], ver também seção 6.1.2. Entretanto, neste trabalho anterior, tal rearranjo dos átomos de oxigênio foi interpretada como devendo-se à substituição cruzada dos íons de Pr, Ba e Ca. Hipótese semelhante envolvendo os íons de Nd/La, Sr, e Ba está descartada no presente trabalho. Ainda que tanto Nd quanto La possam ocupar parcialmente o sítio do Ba na estrutura RE:123, a possibilidade do Ba ou Sr ocuparem o sítio de terra rara é bastante remota. Além disso, o refinamento de Rietveld indica plena ocupação do sítio de terra rara por Nd ou La para as respectivas amostras. Ainda que a hipótese da ocorrência de substituições cruzadas não se sustente no presente caso, devemos chamar a atenção para o fato do rearranjo dos átomos de oxigênio nas cadeias Cu-O dependerem do raio iônico da terra rara, sendo intenso o suficiente para tornar tetragonal a estrutura dos compostos com terras raras maiores. Já para Y e Dy a estrutura continua ortorrômica, mas com ortorrombicidade reduzida. De fato, no que diz respeito a $YBaSrCu_3O_7$, sua ortorrombicidade é menor do que a observada para $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ com $\delta \approx 0$ (amostra completamente oxigenada) [47, 94].

6.2 Determinação da anisotropia do composto MgB_2

A recente descoberta da supercondutividade a 39 K no composto Diboreto de magnésio (MgB_2) [104] trouxe uma grande excitação para a área de pesquisa em materiais supercondutores. Duas características deste material foram as responsáveis por este entusiasmo. A primeira foi a observação de valores razoavelmente altos para a densidade de corrente crítica [93, 31], para amostras policristalinas. Isto indica que, para este material, os problemas com junções intergrãos não sejam relevantes, ao contrário do observado para as cerâmicas de alta T_c . Uma outra característica importante apontada nos primeiros trabalhos neste tema seria o fato deste material ser supostamente isotrópico [93, 85], ainda que alguns questionamentos sobre a veracidade desta afirmação já tenham surgido [127]. Com estas duas qualidades, juntamente com uma T_c muito superior a de todos os outros supercondutores clássicos, o MgB_2 surge como um dos materiais supercondutores mais promissores do ponto de vista tecnológico. E é esta possibilidade de aplicação quase imediata deste material o que causou tamanha excitação. Outra característica deste material que favoreceu o surgimento de um número incrível de trabalhos neste tema num período de poucos meses, é a facilidade de se obter amostras policristalinas deste material (sendo, inclusive comercializado como reagente). De fato, todos os trabalhos citados acima foram desenvolvidos utilizando amostras policristalinas. Para poder discutir com mais propriedade certas características do material (tais como sua possível isotropia), entretanto, é necessário ter uma amostra monocristalina ou, no mínimo, uma amostra policristalina texturizada. Dada a dificuldade de crescer monocristais de MgB_2 , nosso grupo adotou uma estratégia diferente e conseguiu obter amostras de grãos alinhados. Com esta amostra, pudemos estudar a anisotropia do campo crítico superior, H_{c2} , deste material. Nós observamos que o material possui sim uma certa anisotropia, mas que esta é significativamente menor do que a observada para as cerâmicas de alta T_c . Este é um resultado de grande importância já que trata de uma das principais qualidades alegadas a este material. Tal trabalho foi recentemente aceito para publicação [52], e será o tema desta seção.

O primeiro passo deste trabalho foi obter os cristalitos de MgB_2 . Para tanto, partiu-se de uma mistura estequiométrica de boro e magnésio (99.5 at% e 99.8% de pureza, respectivamente). Esta mistura foi selada em um tubo de tântalo com uma atmosfera de argônio, o qual foi encapsulado em uma ampola de quartzo e posta para reagir no forno. A ampola foi inicialmente aquecida a $1200^\circ C$, onde permaneceu por 1 hora. A seguir ela foi lentamente resfriada até $700^\circ C$ a $10^\circ C/min$, depois até

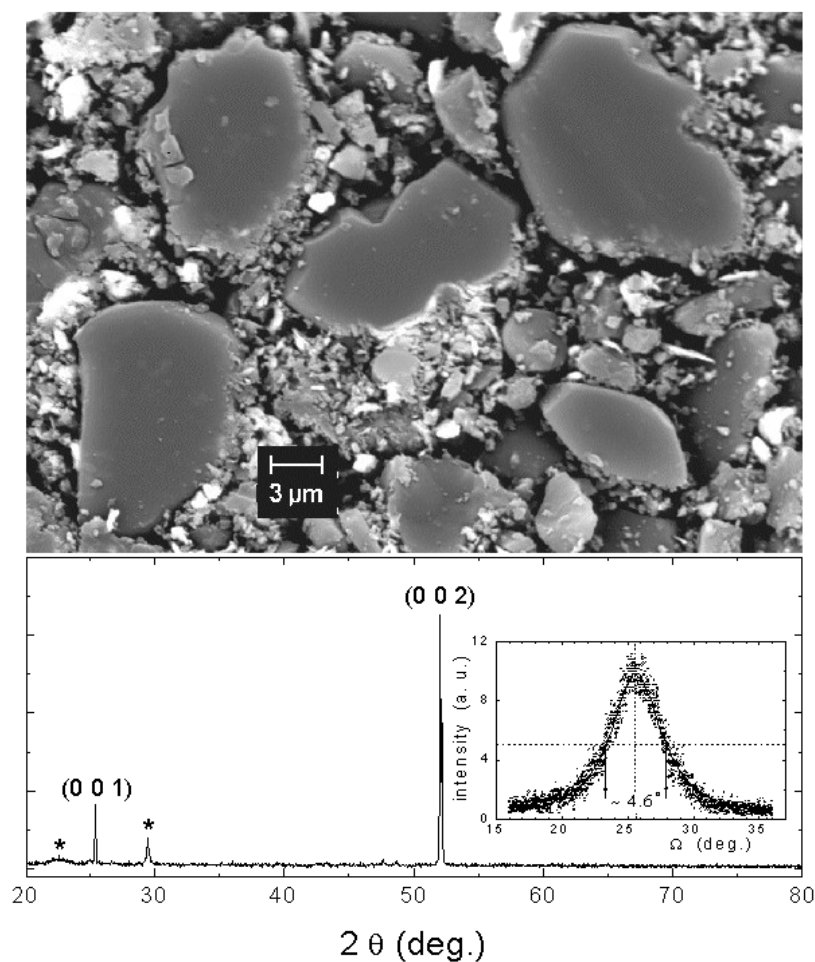


Figura 6.8: Acima: Foto obtida por microscopia eletrônica de varredura mostrando os cristalitos de MgB_2 alinhados e o material intergrãos. Abaixo: Padrão de difração de raios X mostrando apenas os picos (001) e (002) do MgB_2 , além de dois picos espúrios indexados como SiO_2 . O detalhe mostra uma *rocking curve* em torno do pico (002), indicando um desalinhamento médio dos cristalitos, frente ao alinhamento perfeito, da ordem de 4.6° .

$600^\circ C$ a $2^\circ C/min$ e, finalmente, até temperatura ambiente a uma taxa de $10^\circ C/min$. O material reagido foi então moído, resultando em um pó uniforme constituído basicamente de cristalitos de MgB_2 . Estes cristalitos possuem uma espessura bastante regular, em torno de $2\ \mu m$, enquanto sua maior dimensão varia entre 5 e $40\ \mu m$. Para separar estes cristalitos da escória, o pó reagido foi peneirado de forma a escolher apenas as partículas com dimensões entre 5 e $20\ \mu m$, faixa esta que contém quase que exclusivamente cristalitos.

Ao invés de prensar este pó numa pastilha policristalina, buscou-se aproveitar a assimetria da forma dos cristalitos para fabricar uma amostra texturizada. Isto foi feito espalhando este pó sobre um papel com uma pequena quantidade de araldite. Ao se espalhar o pó com uma pinça, os cristalitos se alinham de forma que suas superfícies maiores ficam paralelas ao papel (ou seja, os cristalitos “deitam”). Na figura 6.8 apresentamos uma fotografia por microscopia eletrônica de varredura de uma das amostras preparadas conforme descrito acima. Podemos ver que juntamente com os cristalitos alinhados de MgB_2 temos bastante lixo entre eles. Boa parte deste lixo vem do desgaste do papel com o processo de alinhamento dos cristalitos. Além disso, os reagentes utilizados não são de alto grau de pureza e grande parte destes contaminantes acaba formando outros compostos que acabam ficando neste lixo. De todos os contaminantes, o que causa maiores transtornos é o ferro, presente neste lixo com uma concentração de 0.5 at%. Análises por microsonda no pó de cristalitos original não indicaram, porém, contaminação por ferro nos cristalitos em si. Desta forma, a presença de ferro na amostra orientada não deve afetar as propriedades supercondutoras dos cristalitos, ainda que a presença da contribuição ferromagnética deste lixo, superimposta à resposta supercondutora dos cristalitos, acabe tornando a análise dos resultados mais trabalhosa. Na parte inferior da figura 6.8 apresentamos ainda o padrão de difração de raios-X para esta amostra, onde observa-se a presença apenas os picos referentes as orientações (001) e (002), indicando o bom alinhamento dos cristalitos. O inset mostra uma “rocking curve” para a orientação (002), de onde verificamos que o desalinhamento dos cristalitos é de aproximadamente 4.5° .

Tendo obtido uma amostra de grãos alinhados, partimos para a sua caracterização magnética. Para tanto realizamos medidas de magnetização, utilizando um magnetômetro SQUID da Quantum Design, e medidas de suscetibilidade magnética AC na plataforma PPMS. Como podemos ver na Fig. 6.9, as curvas de histerese são difíceis de se interpretar dada a sobreposição da resposta ferromagnética da contaminação de ferro com a resposta supercondutora dos cristalitos. A impossibilidade

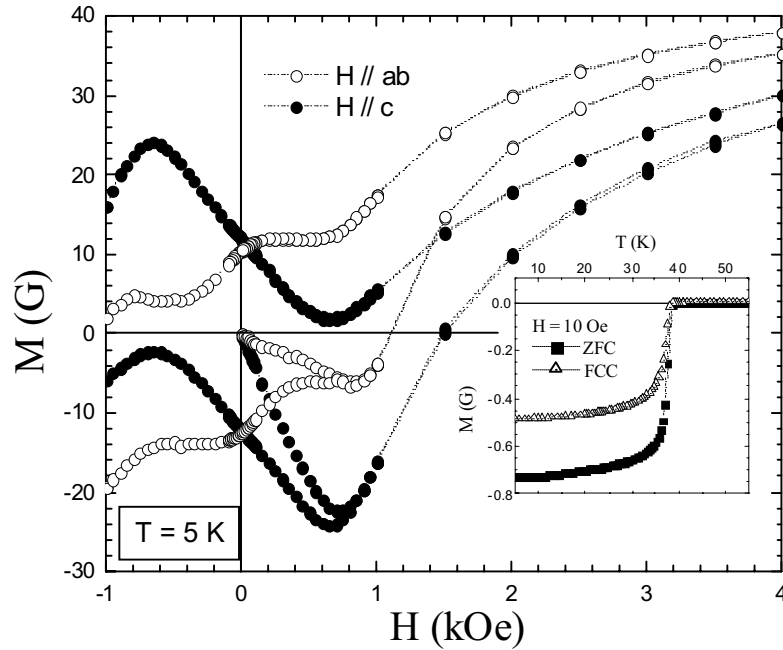


Figura 6.9: Laços de histerese ($M \times H$) a 5 K para ambas as orientações da amostra, mostrando a resposta supercondutora sobreposta ao sinal ferromagnético do material intergrão. No detalhe apresentamos uma medida da magnetização em função da temperatura para duas histórias termomagnéticas diferentes (ZFC e FCC).

de se subtrair esta contribuição ferromagnética de uma forma confiável nos impediu, por exemplo, de tentar estimar J_c . Medidas de $M \times T$, apresentadas no inset da Fig. 6.9, mostram a transição supercondutora em torno de $T_c = 39$ K e que a diferença entre as medidas ZFC e FCC é de apenas 67%. Esta pequena retenção de fluxo é um indicativo da boa qualidade dos cristalitos que formam nossa amostra.

Para determinarmos o campo crítico superior H_{c2} , tivemos de lançar mão das medidas de suscetibilidade AC. Uma grande vantagem da medida da suscetibilidade AC frente as medidas de magnetização, neste caso, é que a suscetibilidade é muito menos afetada pela contaminação de ferro, uma vez que depende essencialmente da variação da magnetização com o campo excitador e não da magnitude da magnetização em si. Desta forma, utilizamos medidas de $\chi' \times T$ para diferentes campos aplicados, apresentadas em detalhe no inset da figura Fig. 6.10, para determinar as linhas

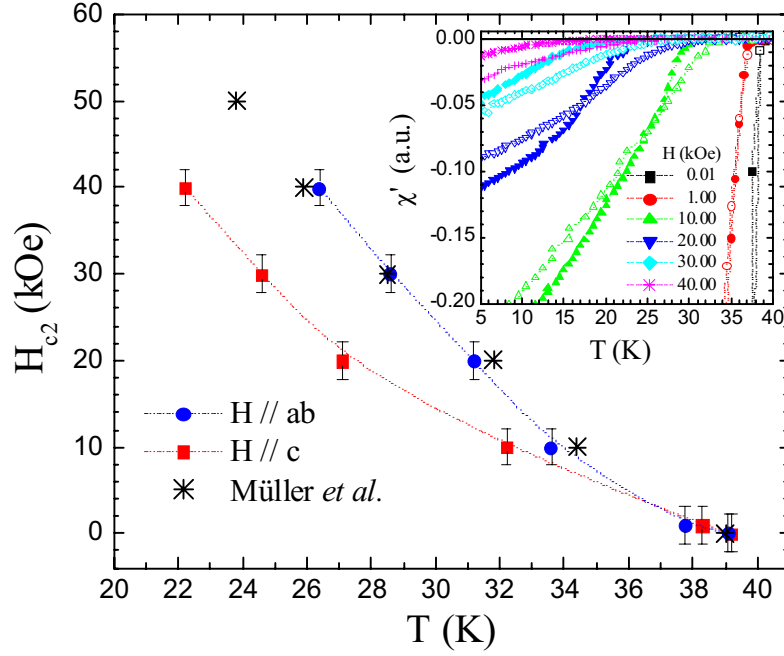


Figura 6.10: Diagrama de fase do campo crítico superior H_{c2} em função da temperatura para ambas as orientações da amostra. Os asteriscos representam a linha $H_{c2} \times T$ obtida por Müller *et al.* (Ref. [103]) para uma amostra policristalina.

de $H_{c2} \times T$ para o campo aplicado paralelamente ou perpendicularmente ao eixo c da amostra. Como podemos ver na Fig. 6.10, as linhas para estas duas orientações são claramente distintas, indicando uma anisotropia $H_{c2}^{ab}/H_{c2}^c \approx 1.7$, onde os índices ab e c indicam o eixo paralelo ao campo aplicado em cada caso. Em termos da razão de anisotropia de massa, obtemos deste resultado que $\varepsilon^2 = m_{ab}/m_c = (\xi_c/\xi_{ab})^2 \approx 0.3$. Este valor indica uma pequena anisotropia quando comparada, por exemplo, com $\varepsilon^2 \simeq 0.04$ ou 10^{-4} , valores típicos para YBCO e BSCCO, respectivamente [16].

Capítulo 7

Conclusões e perspectivas

Durante nosso projeto de doutoramento, exploramos uma grande variedade de temas, tendo obtido resultados conclusivos em muitos deles. Entretanto, algumas linhas interessantes de trabalho não puderam ser devidamente exploradas, seja pela simples falta de tempo, seja por dificuldades encontradas ao longo do trabalho. Para concluir esta dissertação, vamos resumir neste capítulo os principais resultados que obtivemos e indicar alguns possíveis trabalhos futuros que nos parecem interessantes. Em particular, discutiremos aqui o desenvolvimento parcial de uma ponte de microbobinas para medidas locais da suscetibilidade AC, procurando ressaltar as dificuldades encontradas e como acreditamos ser possível contorná-las no futuro.

7.1 Análise da lei de escala

No trabalho central desta tese, exploramos o comportamento universal das medidas de suscetibilidade AC para amostras supercondutoras. Verificamos experimentalmente a lei de escala proposta por Brandt, correlacionando amplitude e frequência do campo excitador. Esta lei de escala foi aplicada com sucesso para duas amostras de nióbio (uma mono-, outra policristalina) e para uma amostra monocristalina de Er:123. Entretanto, observamos que tal lei de escala não produzia resultados satisfatórios quando aplicada a uma amostra policristalina texturizada de Y:123 (amostra YBCO-MTG) [34, 35].

Para compreender estas discrepâncias, propusemos uma generalização desta lei de escala, baseados nos cálculos teóricos para a suscetibilidade AC de amostras supercondutoras finitas derivados do

modelo de estado crítico de Bean. Verificamos assim que a lei de escala de Bean é um caso particular desta lei de escala generalizada, válido quando pode-se utilizar a aproximação logarítmica de Zeldov para a energia de ativação. Concluimos ainda que com aplicação desta lei de escala generalizada é possível extrair diretamente dos dados experimentais qual o modelo que melhor se aplica para descrever a dinâmica de vórtices do sistema estudado. Desta forma pode-se determinar o modelo a ser adotado experimentalmente, evitando-se a necessidade de se escolher um modelo *ad hoc*. A partir do ajuste destes modelos seria então possível extrair parâmetros relevantes para a descrição da dinâmica de vórtices, tais como o expoente de creep (no caso do modelo de Zeldov) ou o expoente característico do regime de movimentação de vórtices μ e o tempo característico τ_0 , no caso do modelo de movimentação coletiva de vórtices [36, 51].

Aplicando esta lei de escala generalizada para a amostra YBCO-MTG, pudemos então verificar que neste caso em particular o modelo de Zeldov não era apropriado (e, conseqüentemente também não é válida a lei de escala de Brandt), devendo ser adotado em seu lugar os resultados derivados do modelo de movimentação coletiva de vórtices. Desta forma fomos capazes de explicar os resultados obtidos para esta amostra e mostramos que também neste caso ocorre um ótimo escalonamento se utilizarmos a lei de escala generalizada [36, 51].

Finalmente, exploramos a possibilidade de aplicar a lei de escala generalizada no estudo do segundo pico na magnetização, presente nas medidas feitas para a amostra Er:123. Verificamos assim uma forte correlação entre o expoente de creep obtido da lei de escala e surgimento do SPM, indicando uma significativa contribuição dinâmica na formação deste segundo pico. Com o intuito de obter mais informações sobre a origem deste segundo pico, procedemos a quebra controlada da amostra, para testarmos a dependência do SPM com as dimensões da amostra. Observamos que após a clivagem da amostra a posição do SPM desloca-se para valores menores do campo magnético aplicado e apresenta uma aparente redução na sua intensidade. Isto parece estar associado a um aumento na taxa de relaxação magnética para campos $H \geq H_{SPM}$ [32, 33].

7.1.1 Possibilidades futuras

Verificamos neste trabalho que a lei de escala generalizada pode vir a ser uma ferramenta bastante útil no estudo da dinâmica de vórtices em supercondutores. Desta forma, há uma vasta gama de possibilidades de novos trabalhos a partir dos resultados que obtivemos. Algumas possibilidades

seriam:

- **Explorar a possibilidade de determinar a linha de irreversibilidade usando medidas de suscetibilidade AC.** Seria interessante verificar se a queda abrupta do expoente de creep que observamos, por exemplo, para as amostras de nióbio estariam ou não relacionadas com a liberação dos vórtices. Para tanto poderíamos comparar os resultados obtidos com a lei de escala, a partir da análise baseada na comparação entre χ'' e o terceiro harmônico χ_3 , e algum método mais convencional, tal como medidas $M \times T$. Analisar as vantagens/desvantagens destes métodos.
- **Utilizar a lei de escala generalizada para definir o modelo mais apropriado a ser aplicado na discussão da dinâmica de vórtices para um dado material.** A lei de escala poderia então ser uma ferramenta auxiliar na discussão da dinâmica de vórtices e ser de grande auxílio na interpretação de resultados obtidos por outras técnicas, inclusive como teste de consistência para a interpretação destes resultados.
- **Explorar com mais detalhes a origem do SPM.** No trabalho que desenvolvemos até aqui não foi possível fazer um estudo realmente detalhado da dependência do SPM com as dimensões da amostra. Para tanto, seria necessário conseguir partir a amostra em pedaços cada vez menores de uma forma controlada, em pelo menos 4 etapas. Amostras convenientes para este tipo de estudo seriam filmes finos, que podem ser facilmente “quebrados em pedaços” utilizando-se técnicas litográficas. Se a idéia for continuar a trabalhar com amostras monocristalinas, seria necessário desenvolver um sistema mais apropriado de montagem desta amostra, para evitar que seus pedaços se soltem e a amostra acabe “desaparecendo” após algumas etapas de clivagem. Seria interessante ainda começar com uma amostra maior, ou mesmo com um conjunto de cristais, já de início, já que o pequeno tamanho da amostra faz com que a razão sinal/ruído não seja muito favorável para este tipo de estudo. Seria interessante ainda analisar a possibilidade de se extrair informações interessantes diretamente das medidas de suscetibilidade AC (sem utilizar a lei de escala).
- **Explorar a influência de íons magnéticos na dinâmica de vórtices.** Ainda que não relacionado à lei de escala, consideramos também muito interessante a possibilidade de se explorar em detalhes como a presença de íons magnéticos (como, por exemplo, o érbio no

sistema Er:123) pode afetar a dinâmica de vórtices. A princípio, devemos ter uma interação entre os vórtices e estes momentos magnéticos localizados, o que poderia até mesmo dar origem a uma espécie de ancoramento intrínseco magnético. Resta a questão se tal interação seria forte o suficiente para poder ser determinada experimentalmente de uma forma inequívoca.

7.2 Estudos substitucionais em supercondutores

Nestes trabalhos, que desenvolvemos em colaboração com o Dr. V.P.S. Awana, procuramos atacar uma série de questões importantes nesta área que ainda estavam em aberto. No estudo do sistema Er:123 dopado com cálcio, por exemplo, mostramos que tal substituição aliovalente, apesar de a princípio aumentar a concentração de buracos nos planos de Cu-O₂, acaba tendo um efeito deletério para a supercondutividade por reduzir a concentração de oxigênio na amostra e por introduzir desordem nos planos de Cu-O₂ (via a redução da ocupação dos sítios de oxigênio O(2) e O(3) [12, 6]. Como verificado por difração de neutrons, este rearranjo dos átomos de oxigênio na estrutura leva a um aumento da ocupação do sítio O(5), reduzindo a ortorrombicidade do sistema, assim como reduz também o ângulo Cu(2)-O(2)-Cu(2), o que também pode contribuir para a supressão da supercondutividade [12, 6].

Outra questão interessante que exploramos foi o comportamento único observado para a dopagem de supercondutores das famílias RE:123 e RE:1113 com o íon Pr. Estudando o sistema NdPr:1113 verificamos que a dopagem com Pr neste sistema é menos prejudicial à supercondutividade do que no caso do sistema NdPr:123. Observamos, de fato, que a supressão de T_c é mais lenta no sistema NdPr:1113 e que é necessária uma concentração maior de Pr para suprimir completamente a supercondutividade. Além disso, verificamos para a amostra Pr:1113 uma temperatura de Neél em torno de 10 K, inferior a $T_N = 17$ K observado para Pr:123. Isto indica uma menor hibridização dos orbitais $\text{Pr}^{4f}\text{-O}^{2p}$. Desta forma, obtivemos uma forte indicação de que a supressão da supercondutividade nestes sistemas passa pela localização dos portadores de carga devido a forte hibridização $\text{Pr}^{4f}\text{-O}^{2p}$ [8].

Em um último trabalho nesta área, buscamos compreender a influência do raio iônico da terra rara nas propriedades estruturais e supercondutoras do composto $\text{REBaSrCu}_3\text{O}_7$. Verificamos que o sistema apresenta uma estrutura ortorrômica para RE = Y ou Dy (menor raio iônico), passando para a estrutural tetragonal ou quase tetragonal para as terras raras de maior raio iônico (La e Nd).

Verificou-se ainda que para todas as amostras o conteúdo de oxigênio é praticamente constante e próximo de 7. Além disso, pode-se observar uma forte dependência da temperatura crítica com o raio iônico, sendo T_c máxima para $\text{RE} = \text{Y}$ e apresentando uma redução sistemática até seu valor mínimo, obtido para a composição com $\text{RE} = \text{La}$ [10, 7].

7.3 Estudos sobre o novo supercondutor MgB_2

Encerrando este projeto, estudamos a anisotropia do campo crítico superior para o novo supercondutor MgB_2 . Utilizando uma técnica desenvolvida pelo Prof. de Lima, uma amostra policristalina de grãos alinhados foi preparada. O alinhamento dos grãos foi confirmado por difração de raios-X. Uma vez dispondo de tal amostra de grãos alinhados, verificamos que este material, inicialmente considerado isotrópico, apresenta na verdade uma relativamente pequena anisotropia no campo crítico superior, $\varepsilon^2 \approx 0.3$. Este resultado pioneiro é de grande importância tanto para aplicações quanto para física básica. Uma não desprezível contaminação por ferro dos reagentes utilizados na preparação da amostra foi observada por microsonda, sendo que verificamos que este ferro encontra-se essencialmente na escória presente entre os grãos de MgB_2 , não afetando assim as propriedades supercondutoras dos cristalitos. Ainda assim, a resposta ferromagnética associada a esta escória dificultou muito a análise dos resultados, impossibilitando inclusive a determinação da anisotropia da corrente crítica a partir de medidas de laço de histerese [52].

7.3.1 Perspectivas futuras

Este material apresenta um grande potencial para aplicações tecnológicas e deve continuar tema de imenso interesse por muito tempo ainda. Uma vez que obtivemos a primeira amostra, a nível mundial, de grãos alinhados que permite o estudo da anisotropia diretamente, devemos explorar tal vantagem ao máximo. Neste sentido, uma extensão natural do trabalho que apresentamos aqui é a determinação da dependência angular de H_{c2} , o que permitiria determinar a anisotropia deste material com muito mais confiança. Este trabalho, de fato, já foi iniciado e encontra-se atualmente em fase final de análise. Outro ponto vital, no qual já estamos trabalhando inclusive, é em obter uma amostra mais pura, onde a contribuição do ferro não esteja presente e assim forneça resultados mais limpos. Isto também responderia a qualquer questionamento quanto a possível influências desta contaminação nos nossos resultados. Com uma amostra de melhor qualidade poderíamos, por

exemplo, estimar a anisotropia de J_c também, o que seria um fortíssimo teste de consistência para os resultados que obtivemos até o momento. Finalmente, devemos sempre ter em mente que a palavra final sobre estas propriedades intrínsecas do material só serão definitivamente confirmadas quando tais estudos puderem ser repetidos para uma amostra monocristalina de alta qualidade. A obtenção de tal amostra é do máximo interesse para o progresso dos estudos neste assunto.

7.4 Desenvolvimento de ponte de microbobinas

Dentro do plano inicial do nosso doutoramento estava o desenvolvimento de uma ponte de 15 microbobinas, cada uma tendo $40 \times 45 \mu m^2$ (bobinas menores, ponte 1) ou $60 \times 60 \mu m^2$ (bobinas maiores, ponte 2). Ambos os projetos (com bobinas de ambos tamanhos) foram desenvolvidos simultaneamente. Estas bobinas seriam fabricadas por técnicas litográficas e o chip resultante seria interfaceado com a plataforma PPMS e alguns equipamentos externos extras para permitir medidas locais da suscetibilidade AC. Estas medidas poderiam ser feitas sequencialmente ao longo de uma linha indo, por exemplo, do centro até a borda da amostra. Com este sistema esperávamos poder estudar a profundidade de penetração de campos magnéticos alternados em amostras supercondutoras. Tal projeto foi iniciado e por dois anos trabalhamos com relativo sucesso no desenvolvimento destes dispositivos. Entretanto, ao atingirmos o estágio de soldar fios aos chips para montá-los na plataforma PPMS deparamos com uma dificuldade crítica para realizar esta solda nos dispositivos que já estavam prontos. Com isso não conseguimos completar o projeto. Com o intuito de registrar o resultado desenvolvido até aqui e fornecer subsídios para a conclusão deste trabalho no futuro, apresentaremos aqui uma rápida discussão do que foi feito, das dificuldades encontradas e de como imaginamos ser possível contornar estes problemas.

Como já comentado rapidamente no parágrafo anterior, as pontes de microbobinas foram desenvolvidas utilizando técnicas litográficas. A primeira etapa deste processo consiste em projetar e fabricar máscaras onde serão impressas todas as estruturas de cada nível do circuito a ser produzido. O circuito é desenvolvido com o auxílio de um software especial e o arquivo gerado será empregado para controlar um canhão de elétrons que vai gravar a máscara. No nosso caso, o projeto foi desenvolvido utilizando o programa Magic e a fabricação da máscara foi feita no Centro de Tecnologia para Informática (CTI). O segundo passo consiste então em passar as estruturas gravadas na máscara para um chip de silício. Para construir as trilhas das microbobinas utilizamos uma técnica chamada

de *lift-off*: primeiramente deposita-se sobre o chip uma fina camada de material fotosensível. Sobreponemos então a máscara com o circuito do nível a ser gravado e expomos o chip à luz. Todo material fotosensível exposto a luz fica, após o tratamento correto, aderido ao chip, enquanto a região que ficou protegida da luz pelas estruturas da máscara podem ser facilmente removidas. Desta forma, o substrato de silício fica exposto apenas na região das trilhas gravadas na máscara. Deposita-se, a seguir um filme fino de alumínio e então, utilizando acetona, remove-se o fotoresiste que havia ficado aderido ao chip. Quando este material se desprende leva consigo todo o filme de alumínio, exceto na região onde este filme pode aderir diretamente ao substrato (ou seja, nas estruturas que desejávamos construir). Este primeiro nível metálico é então coberto por um filme fino isolante de óxido de silício, de forma a isolar este nível metálico já gravado do segundo nível metálico que será depositado em cima dele. Os contatos elétricos necessários entre estes dois níveis metálicos são feitos via janelas abertas neste filme isolante por litografia direta. Finalmente, deposita-se o segundo nível metálico pelo mesmo processo descrito para o primeiro nível metálico e, uma vez que o chip esteja pronto, deposita-se um filme passivador para proteger o circuito¹. Todas as etapas descritas acima foram executadas com sucesso², após diversas tentativas e contratempos, e o resultado pode ser visto na figura 7.1. O filme isolante é transparente e podemos ver na Fig. 7.1 ambos os níveis metálicos (o 1º nível metálico vem da parte inferior da figura e faz uma espiral no sentido horário até o centro da bobina. Neste ponto abre-se uma janela no filme isolante e deposita-se então o 2º nível metálico, que parte do centro da bobina e espirala para fora novamente no sentido horário até completar a bobina e sair pela parte superior da figura. Como para medidas de suscetibilidade AC devemos ter não apenas as bobinas sensoras mas também bobinas de compensação, cada chip possui, na verdade, dois conjuntos de bobinas enroladas em oposição entre si.

A produção destes chips apresentou diversas dificuldades mas pode ser completada com sucesso. Entretanto, quando tentamos conectar estes chips a toda a instrumentação de medida, não obtivemos sucesso e o processo foi interrompido. O problema que tivemos foi a impossibilidade de soldar fios de ouro entre os terminais do chip e contatos maiores ligados ao resto do equipamento. Diversas

¹Evidentemente esta descrição tão sucinta passa ao largo de uma série procedimentos, dificuldades e cuidados necessários para produzir um microchip. Entretanto, nossa intenção aqui era simplesmente dar uma idéia rápida sobre o que estávamos falando e situar a discussão dos problemas que tivemos.

²Esta etapa do trabalho foi desenvolvido no Laboratório de Processos e Dispositivos (LPD), Unicamp, sob a supervisão do Professor Jacobus Stewart.

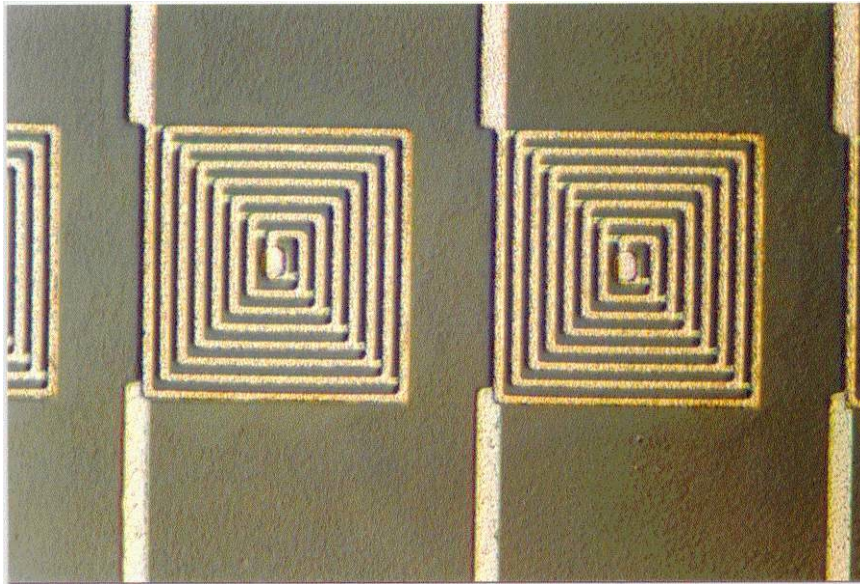


Figura 7.1: Fotografia mostrando algumas bobinas de uma das pontes de microbobinas produzidas neste trabalho. Cada bobina tem $60 \times 60 \mu\text{m}^2$, sendo que a largura das trilhas que a formam é $2 \mu\text{m}$.

tentativas e testes foram realizados em diferentes laboratórios (tanto na Unicamp como no CTI), mas infelizmente não conseguimos compreender a razão deste problema, nem resolvê-lo.

7.4.1 Perspectivas Futuras

Não ter conseguido completar este projeto das microbobinas foi talvez uma das maiores decepções que tivemos neste trabalho, e pensamos ainda em voltar a este projeto e completá-lo em algum momento. Algumas reflexões sobre os problemas enfrentados e como, espero, podemos contorná-los:

- **Projeto das bobinas:** Em primeiro lugar, creio que deve-se investir mais tempo no desenvolvimento de projeto das microbobinas em si. Um sério problema a ser atacado é a sensibilidade do sistema de medida. Queremos bobinas pequenas que permitam medidas realmente locais, mas quanto menor a bobina menor vai ser o sinal que queremos analisar. Aumentando o número de espiras podemos melhorar nossa sensibilidade. Isso significa utilizar trilhas mais estreitas e/ou mais níveis metálicos. Ambas alternativas representam imensas complicações técnicas para a fabricação destes chips, mas eventualmente serão necessárias. A otimização

do dimensionamento das bobinas, pensando na escala e na intensidade dos fenômenos que gostaríamos de estudar talvez não tenha sido feita a contento nesta primeira tentativa e deve ser repensada numa futura continuação do projeto.

- **Estratégia de trabalho:** Em termos de estratégia de trabalho, considero que seria de extrema utilidade desenvolver alguns estágios intermediários até chegar às bobina finais. Como em um único chip é possível gravar simultaneamente um certo número de circuitos simultaneamente, eu proporia que a máscara contivesse circuitos com bobinas de 40, 60, 100, 200 e 500 μm . Ainda que as maiores bobinas não possam ser utilizadas para fazer medidas simultâneas em diferentes posições da amostra, elas seriam de extrema utilidade na determinação de outros possíveis problemas que poderiam surgir, tais como ruídos introduzidos por contatos deficientes. Além disso, este seria um conjunto interessante por si só. Seria como se tivéssemos diferentes equipamentos que nos permitissem olhar diferentes fenômenos em diferentes escalas. Uma vez que conseguíssemos obter sucesso com uma bobina maior, com trilhas mais largas e tudo mais, poderíamos aos poucos caminhar na direção a sistemas mais delicados e complexos, apoiados na experiência adquirida com os sistemas mais simples. Tentar partir diretamente para o produto final me parece atualmente como tendo sido um erro tático (ainda que defensável; veja que este método sistemático que proponho acima pode aumentar as chances de sucesso, mas também aumenta significativamente o tempo e o trabalho envolvidos no desenvolvimento do projeto). Além disso, talvez fosse desejável ter um aluno dedicado exclusivamente a este projeto. Seria uma atitude arriscada (principalmente por parte do aluno), mas aumentaria o empenho, não se dividiria o tempo com outros projetos e, em última análise, a absoluta necessidade de se chegar a um resultado poderia ser um poderoso motivador para superar as dificuldades encontradas.
- **Materiais e métodos:** Creio que as técnicas empregadas neste trabalho foram apropriadas e, a menos que pretenda-se partir para projetos mais complexos (com níveis metálicos adicionais, por exemplo), não creio que sejam necessárias mudanças neste aspecto. Com relação a materiais, talvez a opção por fazer as trilhas metálicas com alumínio não tenha sido muito feliz. De fato, a dificuldade encontrada em soldar os fios nos terminais do chip aparentemente deve-se ao filme metálico. Talvez fosse o caso de ter depositado uma liga de alumínio com outros metais (por exemplo, níquel) nos terminais. Talvez a melhor opção teria sido fabricar toda a bobina

em ouro. Em todo caso, problemas com filmes de alumínio e, eventualmente, com a oxidação destes filmes, foram observados em alguns testes feitos com diferentes filmes preparados em diferentes máquinas com diferentes técnicas. Isto foi um tanto quanto surpreendente, já que nada disso era esperado. Um outro ponto que pode ser melhorado consiste na rapidez de processamento. Idealmente, deve-se procurar fazer todas as etapas de fabricação do chip em sequência no menor tempo possível. Assim evita-se problemas como oxidação e adesão de sujeira na superfície do chip (limpeza é crítica no desenvolvimento destes dispositivos). Uma vez que nosso tempo tinha de ser dividido entre diferentes projetos, nunca foi possível realmente processar um chip completo de uma só vez (de fato, dificilmente conseguíamos completar uma etapa completa sem interrupções). Este é um outro ponto que pode ter contribuído para o aparecimento dos problemas encontrados ao longo do processo. Além disso, até aprender as técnicas e otimizá-las para o seu dispositivo são necessárias várias tentativas e testes, que podem ser rápidos se executados de uma só vez, mas levam meses se forem feitos aos poucos. O problema da impossibilidade de colocar os contatos nos chips que crescemos, por exemplo, é uma falha crítica cuja solução ideal seria voltar ao início e fabricar um novo chip a partir do zero. Esta solução seria viável se fosse possível fabricar um chip em um mês (e isso é possível), mas fica inviável se o aluno for levar um ano (que foi, de certa forma, o nosso caso). Estes eram alguns dos motivos por trás da minha sugestão de dedicação exclusiva a este projeto por parte do aluno.

Em resumo, considero este projeto muito interessante, perfeitamente viável e espero que ele possa ser completado no futuro. Entretanto, algumas mudanças, principalmente de ordem de planejamento, devem ser implementadas para que este dispositivo possa ser fabricado e utilizado com sucesso.

Concluindo, neste trabalho estudamos aspectos básicos da técnica de suscetibilidade AC e suas aplicações. Na primeira parte do trabalho verificamos as condições de validade da lei de escala proposta por Brandt, generalizando-a posteriormente para podermos explicar a totalidade dos dados que obtivemos. Tal lei de escala foi então aplicada com sucesso como ferramenta no estudo do segundo pico da magnetização para uma amostra monocristalina de Er:123. Já na segunda parte do trabalho, aplicamos a técnica da suscetibilidade AC na caracterização de diferentes materiais supercondutores. Buscamos assim contribuir para o melhor entendimento sobre questões importantes

ainda em aberto, tais como os mecanismos responsáveis pela supressão da supercondutividade com a dopagem com Pr e as influências do raio iônico da terra rara e das vacâncias de oxigênio nas propriedades supercondutoras em diferentes famílias de materiais. Aplicamos ainda medidas de suscetibilidade AC no estudo da anisotropia do campo crítico superior para uma amostra de grãos alinhados de MgB_2 .

Bibliografia

- [1] Y. Abulafia, A. Shaulov, Y. Wolfus, R. Prozorov, L. Burlachkov, and Y. Yeshurun. Local magnetic relaxation in high-temperature superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 75(12):2404, 1995.
- [2] Y. Abulafia, A. Shaulov, Y. Wolfus, R. Prozorov, L. Burlachkov, Y. Yeshurun, D. Majer, E. Zeldov, H. Wühl, V. B. Geshkenbein, and V. M. Vinokur. Plastic vortex in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 77(8):1596, 1996.
- [3] S. K. Agarwal, R. Lal, V. P. S. Awana, S. P. Pandey, and A. V. Narlikar. Superconductivity of the Pr-doped $(Y, Eu)Ba_2Cu_4O_8$ system. *Phys. Rev. B*, 50(14):10265, 1994.
- [4] P. W. Anderson and Y. B. Kim. Hard superconductivity: Theory of the motion of Abrikosov flux lines. *Rev. Mod. Phys.*, (36):39, 1964.
- [5] S. S. Ata-Allah, Y. H. Xu, and Ch. Heiden. Effect of Zn doping on the superconductivity of $RBa_2Cu_3-xZn_xO_{7-\delta}$ ($R = Yb, Er, Y, Dy, Gd, Eu, Sm$ and Nd). *Physica C*, 221:39, 1994.
- [6] V. P. S. Awana, C. A. Cardoso, O. F. de Lima, S. K. Malik, W. B. Yelon, A. Gupta, A. Sedky, and A. V. Narlikar. Structural studies on $Er_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$: oxygen vacancies in $Cu-O_2$ planes. *Physica C*, 341-348(1-4):557, 2000.
- [7] V. P. S. Awana, C. A. Cardoso, O. F. de Lima, S. K. Malik, W. B. Yelon, R. Prasad, A. Gupta, A. Sedky, and A. V. Narlikar. Rare earth ionic size dependence of (T_c) in $RBaSrCu_3O_7$ (RE = Y, Dy, Nd, and La) series. *Physica C*, 341, 2000.
- [8] V. P. S. Awana, C. A. Cardoso, O. F. de Lima, R. Singh, A. V. Narlikar, W. B. Yelon, and S. K. Malik. Suppression of superconductivity with Pr substitution in $Nd_{1-x}Pr_xBaCaCu_3O_7$ system. *Physica C*, (316):113, 1999.

- [9] V. P. S. Awana, O. F. de Lima, S. K. Malik, W. B. Yelon, and A. V. Narlikar. Structural and superconducting properties of $LaBaCaCu_3O_{7+\delta}$ system: a neutron diffraction study. *Physica C*, 314:93, 1999.
- [10] V. P. S. Awana, S. K. Malik, C. A. Cardoso, O. F. de Lima, A. Gupta, A. Sedky, W. B. Yelon, R. Prasad, and A. V. Narlikar. Strong dependence of superconducting transition temperature (T_c) on the rare earth ionic size in $REBaSrCu_3O_7$ (RE = Y, Dy, Nd, and La) series. *Mod. Phys. Lett. B*, 14(10):361, 2000.
- [11] V. P. S. Awana, S. K. Malik, and W. B. Yelon. Effect of Ca substitution on the superconductivity in $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ ($y \approx 0$) system: a neutron diffraction study. *Mod. Phys. Lett. B*, 10(18):845, 1996.
- [12] V. P. S. Awana, S. K. Malik, W. B. Yelon, C. A. Cardoso, O. F. de Lima, A. Gupta, A. Sedky, and A. V. Narlikar. Neutron diffraction on $Er_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($0.0 \leq x \leq 0.3$) system: Possible oxygen vacancies in $Cu - O_2$ planes. *Physica C*, 338:197, 2000.
- [13] C. P. Bean. Magnetization of high-field superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, (36):31, 1964.
- [14] C. P. Bean and Livingston J. D. Surface barrier in type-II superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 12(1):14, 1964.
- [15] T. G. Berlincourt, R. R. Hake, and D. H. Leslie. Superconductivity at high magnetic fields and current densities in some nb-zr alloys. *Phys. Rev. Lett.*, 6(12):671, 1961.
- [16] G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur. Vortices in high-temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 66:1125, 1994.
- [17] E. H. Brandt. Thin superconductor in a perpendicular magnetic AC field II - circular disk. *Phys. Rev. B*, 50(6):4034, 1994.
- [18] E. H. Brandt. Thin superconductors in a perpendicular magnetic field: general formulation and strip geometry. *Phys. Rev. B*, 49(13):9024, 1994.
- [19] E. H. Brandt. Transverse AC susceptibility of strips and disks with complex linear resistivity. *Phys. Rev. B*, 50(18):13833, 1994.

- [20] E. H. Brandt. The flux-line lattice in superconductors. *Rep. Prog. Phys.*, 58:1465, 1995.
- [21] E. H. Brandt. Square and rectangular thin superconductors in a transverse magnetic field. *Phys. Rev. Lett.*, 74(15):3025, 1995.
- [22] E. H. Brandt. Superconductors of finite thickness in a perpendicular magnetic field: strips and slabs. *Phys. Rev. B*, 54(6):4246, 1996.
- [23] E. H. Brandt. Universality of flux creep in superconductors with arbitrary shape and current-voltage law. *Phys. Rev. Lett.*, 76(21):4030, 1996.
- [24] E. H. Brandt. Susceptibility of superconductor disks and rings with and without flux creep. *Phys. Rev. B*, 55(21):14513, 1997.
- [25] E. H. Brandt. Superconductor disks and cylinders in axial magnetic field: I. flux penetration and magnetization curves. *Phys. Rev. B*, 58(10):6506, 1998.
- [26] E. H. Brandt. Superconductor disks and cylinders in axial magnetic field: II. nonlinear and linear ac susceptibilities. *Phys. Rev. B*, 58(10):6523, 1998.
- [27] E. H. Brandt and M. Indenbom. Type-II superconductor strip with current in a perpendicular magnetic field. *Phys. Rev. B*, 48(17):12893, 1993.
- [28] E. H. Brandt, M. Indenbom, and A. Forkl. Type-II superconducting strip in a perpendicular magnetic field. *Europhys. Lett.*, 22(9):735, 1993.
- [29] P. Brüll, D. Kirchgässner, and P. Leiderer. Observation of symmetric patterns in the flux distribution of thin $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ films. *Physica C*, 182:339, 1991.
- [30] R. G. Buckley, J. L. Tallon, D. M. Pooke, and M. R. Presland. Calcium-substituted superconducting $RBa_2Cu_4O_8$ with $T_c \approx 90$ K prepared at one atmosphere. *Physica C*, 165:391, 1990.
- [31] P. C. Canfield, D. K. Finnemore, S. L. Bud'ko, J. E. Ostenson, G. Lapertot, C. E. Cunningham, and C. Petrovic. Superconductivity in dense MgB_2 wires. cond-mat/0102289.

- [32] C. A. Cardoso, M. A. Avila, R. A. Ribeiro, and O. F. de Lima. Critical current study using AC susceptibility measurements in $ErBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ crystal showing the fishtail effect. *Physica C*, 341, 2000.
- [33] C. A. Cardoso, M. A. Avila, R. A. Ribeiro, and O. F. de Lima. Scaling of non-linear complex susceptibility applied to the study of type-II superconductors. *Physica C*, 354:165, 2001.
- [34] C. A. Cardoso and O. F. de Lima. Scaling law relating frequency and amplitude in AC susceptibility measurements of type-II superconductors. *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 44(1):1283, 1999.
- [35] C. A. Cardoso and O. F. de Lima. Experimental verification for a scaling law relating amplitude and frequency in the complex susceptibility of type-II superconductors. *Physica C*, 334:185, 2000.
- [36] C. A. Cardoso and O. F. de Lima. Universal behavior of ac susceptibility measurements in type II superconductors. *Physica C*, 341-348:1295, 2000.
- [37] R. J. Cava, B. Batlogg, C. H. Chen, E. A. Rietman, S. M. Zharuk, and D. Werder. Oxygen stoichiometry and normal-state properties of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Nature*, 329(6138):423, 1987.
- [38] D. X. Chen, A. Sanchez, T. Puig, L. M. Martinez, and J. S. Munoz. Ac susceptibility of grains and matrix for high- T_c superconductors. *Physica C*, (168):652, 1990.
- [39] T. M. Chen, Y. L. Lai, and F. S. Kao. The high-pressure synthesis and characterization of some praseodymium-substituted rare-earth based $R_2Ba_4Cu_7O_{14+\delta}$ ($R = Nd, Sm, Eu, Gd, Ho, Tm$). *Physica C*, (282-287):789, 1997.
- [40] O. Chmaissem, J. D. Jorgensen, S. Short, A. Knizhnik, Y. Eckstein, and H. Shaked. Scaling of transition temperature and CuO_2 plane buckling in a high-temperature superconductor. *Nature*, 397(6714):45, 1999.
- [41] L. Civale, T. K. Worthington, L. Krusin-Elbaum, and F. Holtzberg. Nonlinear AC susceptibility response near the irreversibility line. In R. A. Hein, T. L. Francavilla, and D. H. Liebenberg, editors, *Magnetic Susceptibility of Superconductors and Other Spin Systems*, page 313. Plenum Press, 1991.

- [42] J. R. Clem. Theory of ac losses in type-II superconductors with a field-dependent surface barrier. *J. Appl. Phys.*, 50(5):3518, 1979.
- [43] J. R. Clem. Granular and superconducting-glass properties of the high-temperature superconductors. *Physica C*, (153):50, 1988.
- [44] J. R. Clem. AC losses in type II superconductors. In R. A. Hein, T. L. Francavilla, and D. H. Liebenberg, editors, *Magnetic Susceptibility of Superconductors and Other Spin Systems*, page 177. Plenum Press, 1991.
- [45] J. R. Clem and A. Sanchez. Hysteretic ac losses and susceptibility of thin superconducting disks. *Phys. Rev. B*, 50(13):9355, 1994.
- [46] A. Conde-Gallardo, I. Joumard, J. Marcus, and T. Klein. Nonlinear ac response of the vortex system in the cubic $(K, Ba)BiO_3$ superconductor. *Eur. Phys. J. B*, 11:255, 1999.
- [47] A. Das and R. Suryanarayanan. Remarkable influence of heat-treatment on the structural and superconducting properties of $Y_{1-x}Pr_xSrBaCu_3O_{6+z}$. *J. Phys. I*, 5(6):623, 1995.
- [48] M. Däumling and D. C. Larbalestier. Critical state in disk-shaped superconductors. *Phys. Rev. B*, 40(13):9350, 1989.
- [49] M. Däumling, J. M. Seuntjens, and D. C. Larbalestier. Oxygen-defect flux pinning, anomalous magnetization and intragrain granularity in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Nature*, 346(6282):332, 1990.
- [50] O. F. de Lima, M. A. Avila, and C. A. Cardoso. Studies of paramagnetic frozen states in superconducting *Nb* and *Ta* samples. *Physica C*, 282, 1997.
- [51] O. F. de Lima and C. A. Cardoso. Experimental study on scaling laws for the complex susceptibility of type-II superconductors. *Phys. Rev. B*, 61(17):11722, 2000.
- [52] O. F. de Lima, R. A. Ribeiro, M. A. Avila, C. A. Cardoso, and A. A. Coelho. Anisotropic superconducting properties of aligned MgB_2 crystallites. *Phys. Rev. Lett.*, 86(26):5974, 2001.
- [53] C. J. Van der Beek, M. V. Indenbom, G. D'Anna, and W. Benoit. Nonlinear AC susceptibility, surface and bulk shielding. *Physica C*, 258:105, 1996.

- [54] G. Deutscher and K. A. Müller. Origin of superconductive glassy state and extrinsic critical currents in high- T_c oxides. *Phys. Rev. Lett.*, 59(15):1745, 1987.
- [55] P. Esquinazi, A. Setzer, D. Fuchs, Y. Kopelevich, E. Zeldov, and C. Assmann. Vortex avalanches in Nb thin films: Global and local magnetization measurements. *Phys. Rev. B*, 60(17):12454, 1999.
- [56] L. Fàbrega, J. Fontcuberta, L. Civale, and S. Pinol. High-frequency flux dynamics in single-crystal $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_4$. *Phys. Rev. B*, 50(2):1199, 1994.
- [57] L. Fàbrega, J. Fontcuberta, S. Pinol, C. J. Van der Beek, and P. H. Kes. ac response of the vortex system in a $Pr_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-\delta}$ single crystal. *Phys. Rev. B*, 47(22):15250, 1993.
- [58] R. Fehrenbacher and T. M. Rice. Unusual electronic structure of $PrBa_2Cu_3O_7$. *Phys. Rev. Lett.*, 70(22):3471, 1993.
- [59] M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur. Theory of collective flux creep. *Phys. Rev. Lett.*, 63(20):2303, 1989.
- [60] D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse. Thermal fluctuations, quenched disorder, phase transitions, and transport in type-II superconductors. *Phys. Rev. B*, 43:130, 1991.
- [61] M. P. A. Fisher. Vortex-glass superconductivity: A possible new phase in bulk high- T_c oxides. *Phys. Rev. Lett.*, 62(12):1415, 1989.
- [62] A. Forkl and H. Kronmüller. A contribution to the analysis of the current-density distribution in elongated hard type-II superconductors with rectangular cross-section. *Physica C*, 228:1, 1994.
- [63] D. J. Frankel. Critical-state model for the determination of critical currents in disk-shaped superconductors. *J. Appl. Phys.*, 50(8):5402, 1979.
- [64] W. T. Fu, H. W. Zandbergen, C. J. van der Beek, and L. J. de Jongh. High-temperature superconductivity in $LaBaCaCu_3O_{6.85}$. *Physica C*, 156:133, 1988.
- [65] J. Gilchrist and T. Dombre. Flux creep and harmonic generation. *Phys. Rev. B*, 49(2):1466, 1994.

- [66] R. B. Goldfarb, A. F. Clark, A. I. Braginski, and A. J. Panson. Evidence for two superconducting components in oxygen-annealed single-phase Y-Ba-Cu-O. *Cryogenics*, 27(9):475, 1987.
- [67] R. B. Goldfarb, M. Lelental, and C. A. Thompson. Alternating-field susceptometry and magnetic susceptibility of superconductors. In R. A. Hein, T. L. Francavilla, and D. H. Liebenberg, editors, *Magnetic Susceptibility of Superconductors and Other Spin Systems*, page 49. Plenum Press, 1992.
- [68] A. Gurevich. Nonlinear flux diffusion in superconductors. *Int. J. Mod. Phys. B*, 9(9):1045, 1995.
- [69] A. Gurevich and E. H. Brandt. Flux creep in superconducting films: An exact solution. *Phys. Rev. Lett.*, 73(1):178, 1994.
- [70] A. Gurevich and E. H. Brandt. Ac response of thin superconductors in the flux-creep regime. *Phys. Rev. B*, 55(18):12706, 1997.
- [71] A. Gurevich and H. K  pfer. Time scales of the flux creep in superconductors. *Phys. Rev. B*, 48(9):6477, 1993.
- [72] A. Gurevich and V. M. Vinokur. Nonlinear electrodynamics of randomly inhomogeneous superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 83(15):3037, 1999.
- [73] R. A. Hein. Ac magnetic susceptibility, Meissner effect, and bulk superconductivity. *Phys. Rev. B*, 33(11):7539, 1986.
- [74] Z. Henkie, T. Cichorek, H. Drulis, and J. Klamut. Hydrogenation and deoxygenation effects on the thermoelectric power of $SmBa_2Cu_3O_7$. *Physica C*, 214:138, 1993.
- [75] Th. Herzog, H. A. Radovan, P. Ziemann, and E. H. Brandt. Experimental test of theories describing the magnetic ac susceptibility of differently shaped superconducting films: Rectangles, squares, disks, and rings patterned from $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ films. *Phys. Rev. B*, 56(5):2871, 1997.
- [76] E. M. McCarron III, M. K. Crawford, and J. B. Parise. Observation of superconductivity in $(Y_{1-x}Ca_x)Ba_2Cu_3O_6$. *J. Solid State Chem.*, 78(1):192, 1989.

- [77] T. Ishida and R. B. Goldfarb. Fundamental and harmonic susceptibilities of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev B*, 41(13):8937, 1990.
- [78] T. Ishida and H. Mazaki. Superconducting transition of multiconnected Josephson network. *J. Appl. Phys.*, 52(11):6798, 1981.
- [79] Jackson. *Classical electrodynamics*. Wiley & Sons, 1975.
- [80] C. D. Jeffries, Q. H. Lam, Y. Kim, L. C. Bourne, and A. Zettl. Symmetry breaking and nonlinear electrodynamics in the ceramic $YBa_2Cu_3O_7$. *Phys. Rev. B*, 37:9840, 1988.
- [81] H. Jhans, S. K. Malik, and R. Vijayaraghavan. Synthesis and magnetic properties of the $R_{1+x}Sr_{2-x}Cu_{2+x}Nb_{1-x}O_{8-y}$ system. *Physica C*, 215:181, 1993.
- [82] L. Ji, R. H. Sohn, G. C. Spalding, C. J. Lobb, and M. Tinkham. Critical-state model for harmonic generation in high-temperature superconductors. *Phys. Rev. B*, 40(16):10936, 1989.
- [83] M. Jirsa and L. Poust. A comparative study of irreversible magnetisation and pinning force density in $(RE)Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ and some other high- T_c compounds in view of a novel scaling scheme. *Physica C*, 291:17, 1997.
- [84] M. Jirsa, L. Poust, D. Dlouhy, and M. R. Koblishka. Fishtail shape in the magnetic hysteresis loop for superconductors: interplay between different pinning mechanisms. *Phys. Rev. B*, 55(5):3276, 1997.
- [85] W. N. Kang, K. H. P. Kim, H. J. Kim, E. M. Choi, M. S. Park, M. S. Kim, Z. Du, C. U. Jung, K. H. Kim, and M. O. Mun S. I. Lee. Fluctuation magnetoconductance in MgB_2 . cond-mat/0103161.
- [86] Y. B. Kim, C. F. Hempstead, and A. R. Strnad. Magnetization and critical supercurrents. *Phys. Rev.*, 129(2):528, 1963.
- [87] Y. B. Kim and M. J. Stephen. Superconductivity, vol. 2. Marcel Dekker, 1969.
- [88] L. Klein, E. R. Jacoby, Y. Yeshurun, A. Erb, G. Müller-Vogt, V. Breit, and H. Wühl. Peak effect and scaling of irreversible properties in untwinned Y-Ba-cu-o crystals. *Phys. Rev. B*, 49(6):4403, 1994.

- [89] Y. Kopelevich and P. Esquinazi. Second magnetization peak at low fields due to thermomagnetic flux-jump instability. *J. Low Temp. Phys.*, 113(1/2):1, 1998.
- [90] Y. Kopelevich and S. Moehlecke. Avalanchelike magnetic relaxation in the peak-effect regime of a $Nb - O$ solid solution. *Phys. Rev. B*, 58(5):2834, 1998.
- [91] M. J. Kramer, S. I. Yoo, R. W. Callum, W. B. Yelon, H. Xie, and P. Allenspach. Hole filling, charge-transfer and superconductivity in $Nd_{1+x}Ba_{2-x}Cu_3O_{7-\delta}$. *Physica C*, 219:145, 1994.
- [92] L. Krusin-Elbaum, L. Civale, V. M. Vinokur, and F. Holtzberg. “Phase diagram” of the vortex-solid phase in $Y - Ba - Cu - O$ crystals: a crossover from single-vortex (1D) to collective (3D) pinning regimes. *Phys. Rev. Lett.*, 69(15):2280, 1992.
- [93] D. C. Larbalestier, M. O. Rikel, L. D. Cooley, A. A. Polyanskii, J. Y. Jiang, S. Patnaik, X. Y. Cai, D. M. Feldmann, A. Gurevich, A. A. Squitieri, M. T. Naus, C. B. Eom, E. E. Hellstrom, R. J. Cava, K. A. Regan, N. Rogado, M. A. Hayward, T. He, J. S. Sleisky, P. Khalifah, K. Inumaru, and M. Haas. Strongly linked current flow in polycrystalline forms of the new superconductor MgB_2 . cond-mat/0102216.
- [94] J. M. Liang, L. Chang, H. M. Sung, P. T. Wu, and L. J. Chen. Structural and microstructural characterization of a high- T_c superconducting $YBaSrCu_3O_{7-\delta}$. *J. Appl. Phys.*, 64(7):3593, 1988.
- [95] T. B. Lindemer, B. C. Chakoumakos, E. D. Specht, R. K. Williams, and Y. J. Chen. Effects of composition and processing on the superconductivity of $La_{1+z}Ba_{2-z}Cu_3O_y$. *Physica C*, 231:80, 1994.
- [96] B. Loegel, D. Bolmont, and A. Mehdaoui. Utility of the χ_{ac} response in the low field limit for characterizing inhomogeneous superconductors. In R. A. Hein, T. L. Francavilla, and D. H. Liebenberg, editors, *Magnetic Susceptibility of Superconductors and Other Spin Systems*, page 365. Plenum Press, 1991.
- [97] C. K. Lowe-Ma and T. A. Vanderah. In search of chemical clues: single-crystal structural studies of $PrBa_2Cu_3O_6$ and $PrBa_2Cu_3O_7$. *Physica C*, 201:233, 1992.

- [98] S. K. Malik, C. V. Tomy, and P. Bhagava. Suppression of superconductivity in the oxide systems $R_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ $R = (\text{Sm}, \text{Gd}, \text{and Tm})$. *Phys. Rev. B*, 44(13):7042, 1991.
- [99] A. Matsuda, K. Kinoshita, T. Ishii, H. Shibate, T. Watanabe, and Y. Tamada. Electronic properties of $Ba_2Y_{1-x}Pr_xCu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. B*, 38(4):2910, 1988.
- [100] P. N. Mikheenko and Yu. E. Zukovlev. Inductance measurements of HTSC films with high critical currents. *Physica C*, 204:229, 1993.
- [101] D. E. Morris, J. H. Nickel, J. Y. T. Wei, N. G. Asmar, J. S. Scott, U. M. Scheven, C. T. Hultgren, A. G. Markelz, J. E. Post, P. J. Heaney, D. R. Veblen, and R. M. Hazen. Eight new high-temperature superconductors with the 1:2:4 structure. *Phys. Rev. B*, 39(10):7347, 1989.
- [102] K. H. Müller. Ac susceptibility of high temperature superconductors in a critical state model. *Physica C*, (159):717, 1989.
- [103] K. H. Müller, G. Fuchs, A. Handstein, K. Nenkov, V. N. Narozhnyi, and D. Eckert. The upper critical field in superconducting MgB_2 . *cond-mat/0102517*, 2001.
- [104] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani, and J. Akimitsu. Superconductivity at 39 K in magnesium diboride. *Nature*, 410(6824):63, 2001.
- [105] T. Nattermann. Scaling approach to pinning: Charge-density waves and giant flux creep in superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 64(20):2454, 1990.
- [106] J. J. Neumeier, T. Bjornholm, M. B. Maple, J. J. Rhyne, and J. A. Gotaas. Neutron diffraction study of Pr valence and oxygen ordering in the $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ system. *Physica C*, 166:191, 1990.
- [107] W. T. Norris. Calculation of hysteresis losses in hard superconductors carrying ac: isolated conductors and edges of thin sheets. *J. Phys. D*, 3(4):489, 1970.
- [108] D. P. Norton, D. H. Lowndes, B. C. Sales, J. D. Budai, B. C. Chakoumakos, and H. R. Krechner. *Phys. Rev. Lett.*, 66:1537, 1991.
- [109] M. S. Osofsky, J. L. Cohn, E. F. Skelton, M. M. Miller, R. J. Soulen Jr., S. A. Wolf, and T. A. Vanderah. Percolation effects and oxygen inhomogeneities in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ crystals. *Phys. Rev. B*, 45(9):4916, 1992.

- [110] Quantum Design, San Diego, CA. *Physical Property Measurement System*.
- [111] H. B. Radousky. A review of the superconducting and normal state properties of $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_7$. *J. Mater. Res.*, 7(7):1917, 1992.
- [112] M. Reissner and J. Lorenz. Comparison of results of different methods for the analysis of flux creep behavior in a melt-textured $Y_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ sample showing a fishtail effect. *Phys. Rev. B*, 56(10):6273, 1997.
- [113] A. P. Reyes, D. E. MacLaughlin, M. Takigawa, P. C. Hammel, R. H. Heffner, J. D. Thompson, J. E. Crow, A. Kebede, T. Mihalisin, and J. Schwegler. Observation of Cu NMR in antiferromagnetic $PrBa_2Cu_3O_7$ - Evidence for hole-band filling. *Phys. Rev. B*, 42(4):2088, 1990.
- [114] Th. Schuster, M. V. Indenbom, M. R. Koblishka, H. Kuhn, and H. Kronmüller. Observation of current-discontinuity lines in type-II superconductors. *Phys. Rev. B*, 49(5):3443, 1994.
- [115] Th. Schuster, H. Kuhn, and E. H. Brandt. Observation of neutral lines during flux creep in thin high- T_c superconductors. *Phys. Rev. B*, 51(1):697, 1995.
- [116] Th. Schuster, H. Kuhn, and E. H. Brandt. Flux penetration into flat superconductors of arbitrary shape: patterns of magnetic and electric fields and current. *Phys. Rev. B*, 54(5):3514, 1996.
- [117] A. Sedky, A. Gupta, V. P. S. Awana, and A. V. Narlikar. Structural and superconducting properties of $R_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ with $0.50 > x > 0.00$. *Phys. Rev. B*, 58(18):12495, 1998.
- [118] S. Shatz, A. Shaulov, and Y. Yeshurun. Universal behavior of harmonic susceptibilities in type-II superconductors. *Phys. Rev. B*, 48(18):13871, 1993.
- [119] A. Shaulov and D. Dorman. Investigation of harmonic generation in the alternating magnetic response of superconducting $Y - Ba - Cu - O$. *Appl. Phys. Lett.*, 53(26):2680, 1988.
- [120] D. J. Singh. Electronic structure of $PrBa_2Cu_3O_7$. *Phys. Rev. B*, 50(6):4106, 1994.
- [121] R. Singh, A. V. Narlikar, V. P. S. Awana, J. Horvat, and S. X. Dou. Synthesis, structural aspects and superconductivity of $La_{1-x}RE_xBaCaCu_3O_7$ with RE = Nd, Dy, Sm and Pr. *Physica C*, 301:48, 1998.

- [122] O. Stoppard and D. Guban. The low-field AC susceptibility of type-II superconducting thin films. *Physica C*, 241:375, 1995.
- [123] Y. R. Sun, J. R. Thompson, Y. J. Chen, D. K. Christen, and A. Goyal. Strong evidence for vortex-glass - collective-pinning theory in $YBa_2Cu_3O_7$ superconductors. *Phys. Rev. B*, 47(21):14481, 1993.
- [124] P. S. Swartz and C. P. Bean. A model for magnetic instabilities in hard superconductors: The adiabatic critical state. *J. Appl. Phys.*, 39(11):4991, 1968.
- [125] W. Thomson. *Reprint of papers on eletrostatics and magnetism*. Macmillan and Co., 1872.
- [126] J. L. Vargas and D. C. Larbalestier. Flux pinning by ordered oxygen-deficient phases in nearly stoichiometric $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystal. *Appl. Phys. Lett.*, 60(14):1741, 1992.
- [127] Y. Wang, T. Plackowski, and A. Junod. Specific heat in the superconducting and normal state (2-300 K, 0-16 Teslas), and magnetic susceptibilitty of the 38-K superconductor MgB_2 : Evidence for a multicomponent gap. cond-mat/0103181.
- [128] G. V. M. Williams and J. L. Tallon. Ion size effects on T_c and interplanar coupling in $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Physica C*, (258):41, 1996.
- [129] D. G. Xenikos and T. R. Lemberger. Nonlinear magnetization of $Y - Ba - Cu - O$ crystals. *Phys. Rev. B*, 41:869, 1990.
- [130] Y. Xu and W. Guan. Ion-size effect on T_c in $(R_{1-x}Pr_x)Ba_2Cu_3O_{7-y}$ systems (R = Nd, Eu, Gd, Dy, Y, Er, and Yb). *Phys. Rev. B*, 45(6):3176, 1992.
- [131] H. D. Yang, H. L. Tsay, C. R. Shih, and Y. C. Chen. Superconductivity and magnetism in $Y_{1-x}Pr_xSr_2Cu_{2.7}Mo_{0.3}O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. B*, 51(13):8543, 1995.
- [132] Y. Yeshurun, N. Bontemps, L. Burlachkov, and A. Kapitulnik. Dynamic characteristics of the anomalous second peak in magnetization curves of $Bi - Sr - Ca - Cu - O$. *Phys. Rev. B*, 49:1548, 1994.
- [133] Y. Yeshurun and A. P. Malozemoff. Giant flux creep and irreversibility in an Y-Ba-Cu-O crystal: An alternative to the superconducting-glass model. *Phys. Rev. Lett.*, 60(21):2202, 1988.

- [134] Y. Yeshurun, A. P. Malozemoff, and A. Shaulov. Magnetic relaxation in high-temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 68(3):911, 1996.
- [135] E. Zeldov, N. M. Amer, G. Koren, M. W. McElfresh, A. Gupta, and R. J. Gambino. Magnetization and transport currents in thin superconducting films. *Appl. Phys. Lett.*, 56:680, 1990.
- [136] E. Zeldov, J. R. Clem, M. McElfresh, and M. Darwin. Magnetization and transport currents in thin superconducting films. *Phys. Rev. B*, 49(14):9802, 1994.
- [137] V. B. Zenkevitch, A. S. Romanyuk, and V. V. Zheltov. *Cryogenics*, 20:703, 1980.
- [138] J. Zhu, J. Mester, J. Lockhart, and J. Turneaure. Critical states in 2D disk-shaped type II superconductors in periodic external magnetic field. *Physica C*, 212:216, 1993.
- [139] Z. Zou, K. Oka, T. Ito, and Y. Nishihara. Bulk superconductivity in single crystals of $PrBa_2Cu_3O_x$. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 36 part2(1A/B):L18, 1997.